



Dynamique de spin dans le supraconducteur non conventionnel CeCoIn

Justin Panarin

► To cite this version:

Justin Panarin. Dynamique de spin dans le supraconducteur non conventionnel CeCoIn. Autre [cond-mat.other]. Université de Grenoble, 2012. Français. <NNT : 2012GRENY013>. <tel-00767160>

HAL Id: tel-00767160

<https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00767160>

Submitted on 19 Dec 2012

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : **Physique de la matière condensée et Rayonnement**

Arrêté ministériel :

Présentée par

Justin Panarin

Thèse dirigée par **Stéphane Raymond**

préparée au sein du **Service de Physique Statistique, Magnétisme et Supraconductivité (SPSMS)**
dans **Ecole Doctorale de Physique de Grenoble**

Dynamique de spin dans le supraconducteur non-conventionnel CeCoIn₅

Thèse soutenue publiquement le **5 avril 2012**,
devant le jury composé de :

Mme Françoise Hippert

Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses, Grenoble , Présidente

M. Jean-Michel Mignot

Laboratoire Léon Brillouin, CEA Saclay, Rapporteur

M. Shinsaku Kambe

Japan Atomic Energy Agency, Rapporteur

M. William Knafo

Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses, Toulouse, Examineur

M. Stéphane Raymond

Laboratoire de Magnétisme et de Diffraction Neutronique, CEA Grenoble, Directeur de thèse



Remerciements

Comme il se doit dans tout début de manuscrit de thèse : les remerciements !

En effet, ce travail de thèse est très loin d'avoir été le travail d'un personne. Pour commencer, je tiens à remercier les membres du jury et tout d'abord la présidente, Françoise Hippert, qui m'aura suivi pendant toutes mes années d'école d'ingénieur avant de voir l'achèvement de mes études par cette thèse. Merci de m'avoir encouragé et soutenu à la fin de la 3ème année d'école.

Ensuite je tiens à remercier mes deux rapporteurs, en premier lieu Shin Kambe qui a eu le courage de lire mon manuscrit en français de bout en bout et de supporter une soutenance de thèse également en français. Merci beaucoup de l'effort ! Je remercie également Jean-Michel Mignot pour avoir eu la patience de lire mon manuscrit et de sa tolérance envers mon écriture plutôt moyenne. Je tiens à te remercier également pour ton aide lors des expériences au LLB ! Elles furent heureuses ou malheureuses (Dilution bouchée, je pense à toi !) mais dans tous les cas riches en apprentissages et également en physique !

Enfin je remercie William Knafo, mon "prédécesseur" en quelque sorte. Merci d'avoir participé à mon jury de thèse et d'avoir lu et corrigé avec autant de minutie mon manuscrit ! Merci aussi pour les discussions que nous avons eu à Gif-sur-Yvette, haut lieu de fête parisienne, après la conférence SUPRA. Dans ce travail de thèse, une personne a été d'une importance vitale, le timonier qui a tenu la barre pendant la tempête si on tente une métaphore. Je pense à mon directeur de thèse sans qui je ne serais jamais aller aussi loin. Merci à toi Stéphane pour ta patience, ton énergie et ton soutien ! J'ai beaucoup appris grâce à toi et j'aurai du mal à te remercier pour tout ce que tu as fait pour moi.

Ensuite je tiens à remercier les personnes avec qui j'ai pu interagir au sein du SPSMS : tout d'abord Jean-Pascal Brison qui m'a accueilli et a écouté avec patience mes multiples présentations. Les discussions avec toi ont toujours été très enrichissantes. Merci aussi à Gérard et Karine pour la synthèse des cristaux ! Merci pour votre aide et votre enseignement. Il faut également que je remercie les personnes d'IMAPEC pour leur aide notamment Georg, Daniel et Dai pour les discussions et leur conseil d'utilisation du PPMS. Je remercie aussi Vladimir Mineev pour les discussions et les conseils qu'il m'a donné. Je tiens à remercier Jacques Flouquet, puit de sciences sans fin avec qui j'ai eu la chance de pouvoir parler. Pour finir, je tiens à donner un grand remerciement à Marielle Perrier, une secrétaire hors du commun et une personne d'une très grande gentillesse ! Merci de ta tolérance pour toutes les fois où j'ai dépassé les délais et de m'avoir (un peu) engeulé derrière. Je le méritais !

Je tiens maintenant à remercier les personnes du MDN : Frédéric, Béatrice et Eric pour les discussions tant physique que diverses et pour leur très grande sympathie. Je tiens à remercier les techniciens Bruno Vettard et Jacques Previtali pour leur aide dans les expériences. Je tiens au passage à remercier également les techniciens de l'ILL et notamment Olivier Losserand, Simon Baudoin et Sébastien Turc pour leur précieuse aide lors de nos expériences. Enfin je tiens à remercier Louis-Pierre Regnault qui pour moi représente la quintessence du scientifique. Merci pour les discussions que nous avons eu !

Naturellement, je remercie aussi le personnel du LLB avec qui j'ai pu interagir lors de mes deux manip à Orphée mais aussi lors des JDN. Merci Sylvain Petit, Yvan Sidis et Philippe Bourges pour leur aide lors des manip et leur grande sympathie. Merci à Philippe Boutrouille pour ton aide en cryogénie et en trois-axes ! Merci également à Julien Robert pour ton aide et pour les conversations que nous avons eu.

Il faut également que je remercie les thésards que j'ai pu rencontrer pendant ma thèse et qui ont permis de rendre des plus sympathiques cette thèse. Par ordre de départ, je tiens remercier Yann qui m'a montré que le thésard parfait existait, Emmanuel qui m'a permis de m'intégrer au mieux, Elena notre figure de proue et Valentin ! Je tiens à remercier également tous les « jeunes » notamment Vincent (les théoriciens qui s'intéressent au travail des expérimentateurs sont vraiment trop rares !), Driss, Amalia et Caroline !

Merci beaucoup à toi Nicolas ! Te classer dans les thésards serait vraiment trop réducteur ! Merci pour les longues conversations que nous avons eu, pour les soirées que nous avons fait et pour m'avoir soutenu lors de la longue et dure épreuve de la rédaction. Tu as été l'un des moteurs de ces trois ans et quelques mois (et ses quelques mois pèsent lourds!!) que j'ai passé en thèse. Un grand merci Keumé !

Pour finir, je tiens à remercier tout ceux qui n'ont pas été lié du tout à cette thèse mais à ma personne et qui ont rendu ses trois ans des plus agréables. Tout d'abord Pierre, compagnon d'école et de multiples aventures, Ghislain jamais à court d'énergie, Christophe, mon modèle à suivre et Mathias, comparse de grimpe ! Un grand merci à toi Fix, faire une liste de tout ce dont je dois te remercier serait trop long donc je me limiterais à ce « merci ». Un grand merci également à mes frères pour leur soutien, leur encouragements ? Ah tiens, non, vous n'avez pas fait ça ! Mais un grand merci à vous quand même !

J'ai du oublié plein de gens, alors merci à vous !

Bonne lecture !!

Table des matières

1	Présentation de la résonance de spin	3
1.1	Introduction	3
1.1.1	Supraconductivité non-conventionnelle	3
1.1.2	Découverte de la résonance de spin	4
1.2	Modèles de la résonance	4
1.2.1	Modèle de l'exciton de spin	5
1.2.2	Modèle du magnon	7
1.2.3	Modèle du "gap de spin"	8
1.3	La résonance de spin dans les différents composés	9
1.3.1	Résonance dans les cuprates	9
1.3.2	Résonance dans les supraconducteurs au Fer	9
1.3.3	Résonance dans les fermions lourds	11
1.3.4	Conclusion sur les fermions lourds	14
1.4	Conclusion	14
2	Techniques expérimentales	17
2.1	Chaleur spécifique	17
2.2	Diffusion inélastique de neutrons	17
2.3	Le spectromètre trois-axes	21
2.4	Conclusion	24
3	Présentation de CeCoIn₅	27
3.1	Introduction	27
3.2	La famille des 1-1-5	27
3.3	CeCoIn ₅	28
3.3.1	Mesures thermodynamiques	28
3.3.2	Mesure de la surface de Fermi et gap supraconducteur	29
3.4	Mesures neutroniques	29
3.4.1	Diffusion élastique de neutrons : la phase LTHF	29
3.4.2	Diffusion inélastique de neutrons : la Résonance de spin	34
3.5	Conclusion	35
4	Effets des impuretés sur la résonance de spin	37
4.1	Effet des impuretés sur la supraconductivité	37
4.2	Préparation des échantillons	37
4.3	Étude des mesures de chaleur spécifique sur le composé Ce _{1-x} La _x CoIn ₅ et Ce _{1-x} Nd _x CoIn ₅	39
4.3.1	Chaleur spécifique avec une substitution La	39
4.3.2	Chaleur spécifique avec une substitution Nd	40
4.4	Substitution au lanthane	41
4.4.1	Expérience en diffusion inélastique de neutrons pour une concentration $x \leq 3.5\%$	41

4.4.2	Observation sur le composé avec une substitution de 5% et données sur le quasi-élastique dans CeCoIn ₅	50
4.4.3	Conclusion sur les mesures de substitution La	52
4.5	Substitution au Néodyme	54
4.5.1	Expériences en diffusion inélastique de neutrons pour une concentration $x = 5\%$	54
4.5.2	Conclusion sur les mesures de substitution Nd	54
4.6	Comparaison de la substitution La avec YBa ₂ Cu ₃ O ₇ dopé aux Zn et Ni	56
4.7	Comparaison avec les supraconducteurs au Fer	56
4.8	Conclusion	57
5	Effets du champ magnétique sur la résonance de spin	59
5.1	Introduction	59
5.2	Évolution de la résonance sous champ magnétique	59
5.2.1	Conditions expérimentales	59
5.2.2	Champ magnétique appliqué suivant la direction [1,-1,0]	60
5.2.3	Conclusion des mesures en champ vertical	63
5.3	Champ magnétique appliquée suivant la direction [1,1,1]	63
5.4	Mesure dans la phase LTHF	64
5.5	Discussion	67
5.5.1	Comparaison entre le champ suivant [1,-1,0] et [1,1,1]	67
5.5.2	Dégénérescence de la résonance et splitting sous champ	68
5.5.3	Étude de la pente de Ω_{res}	70
5.5.4	Comparaison de l'évolution de Ω_{res} en fonction de $T_c(H)$	70
5.5.5	Résonance de spin et la phase LTHF	71
5.6	Conclusion	73
6	Conclusion	75
	Références	77
A	Anisotropie du moment magnétique de CeCoIn₅	85
A.1	Calcul du moment magnétique de l'état fondamental de CeCoIn ₅	85
A.2	Anistropie de la susceptibilité magnétique dans CeCoIn ₅	85
B	Liste de publications	87

Introduction

Depuis sa découverte en 1911 par Kammerlingh Onnes et Gilles Holst, la supraconductivité a été l'un des sujets marquants de la physique de la matière condensée du XX^{ème} siècle et restera un sujet important du XXI^{ème} siècle. Cet état de la matière où le matériau présente une résistance électrique nulle et l'expulsion du champ magnétique est dû à l'appariement des électrons dans le matériau. Cette appariement change la statistique des électrons qui d'une statistique de Fermi-Dirac passe à une statistique de Bose-Einstein. La question des raisons et du mécanisme de cet appariement reste toujours d'actualité.

Kammerlingh Onnes a découvert la supraconductivité par une étude systématique sur plusieurs matériaux grâce aux moyens cryogéniques qu'il avait réussi à développer (notamment la liquéfaction de l'hélium). Et c'est dans le mercure que fut découverte la supraconductivité à 4.2 K, température très proche de celle de liquéfaction de l'hélium 4. Pour la liquéfaction de l'hélium et la découverte de la supraconductivité Kammerlingh Onnes reçut le prix Nobel en 1913 soit seulement deux ans après l'expérience initiale; signe de l'importance de sa découverte.

De multiples autres travaux suivront cette découverte avec par exemple la découverte de la supraconductivité dans le nitrure de niobium sous 16 K. Les étapes importantes vont être les travaux théoriques accomplis pour expliquer ce phénomène. Ainsi en 1950, une théorie élaborée par Ginzburg et Landau explique les propriétés macroscopiques des supraconducteurs et réussit à prévoir l'existence de deux types de supraconducteurs : de type I ou de type II. Cependant la pierre la plus importante à l'édifice de la supraconductivité vient des physiciens John Bardeen, Leon Neil Cooper et John Robert Schrieffer qui mettent au point la théorie dite "BCS" (nommée d'après les initiales de leurs noms) en 1957. Cette théorie explique la formation des paires de Cooper par une interaction faible liée à une excitation. Dans le cadre de la théorie BCS, le candidat retenu pour l'interaction fut le phonon, mais la théorie marche pour d'autres types d'interactions faibles. Pour leurs travaux, Bardeen, Cooper et Schrieffer reçurent le prix Nobel en 1972.

La théorie BCS prévoyait une température critique T_c maximum, température sous laquelle apparaît la supraconductivité, d'environ 30 K. L'état supraconducteur semblait donc être limité à des températures nécessitant de l'hélium liquide. Aussi la découverte en 1986 de la supraconductivité dans une perovskite de cuivre à base de lanthane sous une température de 35 K par Bednorz et Müller relança la possibilité d'obtenir de haute température critique. En changeant le Lanthane par de l'Yttrium, Bednorz et Müller atteignirent dans le cuprate (nom donné à ces composés à base de cuivre) $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ une température critique de $T_c = 92$ K, supérieure à la température de liquéfaction de l'azote (77 K à pression ambiante). Pour leur découverte Bednorz et Müller eurent le prix Nobel en 1987 soit seulement un an après. Il s'agit du prix Nobel de physique décerné le plus rapidement de l'histoire du Nobel. Ces supraconducteurs haute température furent désignés comme non-conventionnel car la théorie BCS ne s'y appliquait pas.

En parallèle des expériences réalisées sur les cuprates, des recherches étaient accomplies dans d'autres composés à fortes corrélations électroniques, les fermions lourds. Ces composés intermétalliques avec des éléments appartenant aux Lanthanides ou aux Actinides présentent une forte hybridation des électrons de conduction et des électrons f aboutissant à une masse de l'électron plusieurs fois égale à celle de l'électron libre (d'où le nom de fermions lourds). En 1979, la supraconductivité fut découverte dans CeCu_2Si_2 avec $T_c = 0.5$ K et

reçut également le terme de non-conventionnel. En effet, dans ce composé le gap supraconducteur n'est pas uniforme sur la surface de Fermi. La forme du gap est de type d , en image aux orbitales électroniques, alors que la supraconductivité décrite par BCS est de type s , c'est-à-dire uniforme sur la surface de Fermi.

Ainsi la supraconductivité s'enrichissait d'une nouvelle branche dite "non-conventionnelle" qui allait représenter la majorité des études accomplies par la suite. En effet, dans ces composés, la question du mécanisme de l'appariement était ouverte. L'existence d'un ordre antiferromagnétique précurseur de l'ordre supraconducteur (dans le diagramme de phase) laissait supposer une forte importance du magnétisme et en conséquence plusieurs théories furent proposées avec comme mécanisme une interaction magnétique. Ces théories reçurent une accélération avec le développement des techniques de diffusion de neutrons.

En effet, les méthodes de diffusion de neutrons permirent d'étudier les effets de la supraconductivité sur le spectre des excitations. Initialement centré sur les phonons (médiateur de l'interaction attractive dans la théorie BCS), elles mirent en évidence en 1991 dans les cuprates une modification brutale du spectre magnétique dans l'état supraconducteur. En effet, une excitation collective très bien définie apparaissait à une énergie de l'ordre de plusieurs $k_B T_c$. Appelée "Résonance de spin" car le pic est particulièrement intense en comparaison du spectre dans l'état normal, cette excitation fut considérée comme la signature de la supraconductivité sur le magnétisme et était donc une preuve de l'intrication étroite entre magnétisme et supraconductivité.

Depuis 1991, les études de neutrons se sont développées sur les cuprates afin de mieux comprendre la supraconductivité à haute température et mieux cerner la résonance de spin et ses caractéristiques notamment avec l'application d'un champ magnétique ou l'introduction d'impuretés. Cette étude de la résonance était réservée aux cuprates jusqu'à la découverte d'un même phénomène dans le fermion lourd UPd_2Al_3 en 1997. En 2009, la découverte d'une résonance de spin dans un des nouveaux supraconducteurs au Fer acheva d'étendre la gamme des composés présentant une résonance de spin.

Cette thèse est centrée sur l'étude de la résonance de spin dans le fermion lourd $CeCoIn_5$ grâce à la diffusion de neutrons. Dans le **chapitre 1**, nous allons aborder plus en détails la résonance de spin, notamment ses caractéristiques en fonction des composés, les modèles développés et les prédictions théoriques qui en découlent.

Dans le **chapitre 2**, nous présentons les outils utilisés dans cette thèse : la chaleur spécifique (très brièvement) et la diffusion de neutrons, outil extraordinaire pour l'étude de la matière condensée.

Le **chapitre 3** rentrera dans les détails de $CeCoIn_5$, avec notamment une présentation de la famille des 1-1-5 dont il fait partie, une présentation de ses multiples particularités et finalement les résultats des mesures de neutrons effectués avant ou en parallèle de cette thèse par d'autres équipes.

Enfin nous rentrerons dans le vif du sujet avec le **chapitre 4** qui regroupe les expériences de diffusion de neutrons effectuées sur $CeCoIn_5$ avec introduction d'impuretés magnétiques ou non-magnétiques. Le **chapitre 5** conclura cette thèse avec les résultats de la diffusion de neutrons lors de l'application d'un champ magnétique sur le composé.

Chapitre 1

Présentation de la résonance de spin

1.1 Introduction

Le but de ce chapitre est de présenter l'excitation magnétique appelée "Résonance de spin" qui existe dans les supraconducteurs. La résonance de spin est l'un des effets les plus remarquables qu'a la supraconductivité sur le spectre des excitations magnétiques. En effet, il s'agit de l'apparition d'un pic inélastique à une énergie (Ω_{res}) proportionnelle au gap supraconducteur. Cette phrase résume très sommairement ou au contraire de manière précise l'étendue des connaissances sur la résonance. En effet, si on supposait cette excitation parfaitement comprise jusqu'en 2008, les récentes recherches et notamment cette thèse remettent en partie en cause la nature de la résonance de spin.

Après une introduction sur sa découverte, nous présenterons les différents modèles qui ont été développés afin d'expliquer la résonance de spin. Puis dans une dernière partie, nous donnerons les particularités de la résonance dans chacune des familles de supraconducteurs non-conventionnels où elle a été identifiée : les cuprates, les fermions lourds et les supraconducteurs au fer (comprenant les pnictures et des chalcogénures).

1.1.1 Supraconductivité non-conventionnelle

Dans un supraconducteur conventionnel, la transition supraconductrice brise une symétrie qui est celle de l'invariance de jauge. Dans un supraconducteur non-conventionnel, la transition rompt une symétrie de plus que celle de l'invariance de jauge. Ce critère a été retenu pour définir la supraconductivité non-conventionnelle. Cependant il n'est pas totalement exhaustif. En effet, certains supraconducteurs dit "non-conventionnels" ne brisent que l'invariance de jauge lors de la transition supraconductrice et devraient donc, au regard de la définition donnée précédemment, être considérés comme conventionnels. De ce fait, un autre moyen de classification est employé, il s'agit de la nature du mécanisme d'appariement : les phonons pour les supraconducteurs conventionnels et la dynamique électronique ou magnétique pour les supraconducteurs non-conventionnels. Le flou sur la définition de la "supraconductivité non-conventionnelle" dans la littérature est dû au fait qu'il n'y a pas de lien direct entre le mécanisme d'appariement et la symétrie du paramètre d'ordre.

Dans les trois familles de supraconducteurs dont nous allons parler, le mécanisme est supposé être lié aux fluctuations magnétiques. En effet, si on étudie leur diagramme de phase (voir Fig 1.1), on observe l'existence d'un état fondamental antiferromagnétique précurseur de la phase supraconductrice. La disparition de cette phase magnétique à un "point critique quantique" est suivie de l'apparition de la supraconductivité avec parfois une coexistence entre les deux phases. Le point critique quantique correspond à une transition de phase à température nulle (quand $T > 0$ K, les fluctuations thermiques provoquent la transition, par contre à $T = 0$ K, la transition est opérée par les fluctuations quantiques). Le point critique quantique est caractérisé par une augmentation des fluctuations magnétiques et des anomalies de mesures macroscopiques (notamment la résistivité, qui ne suit pas une loi d'un régime de Fermi). Cette augmentation des fluctuations magnétiques est supposée être la cause de l'apparition de la supraconductivité grâce à un mécanisme d'appariement lié à ces fluctuations.

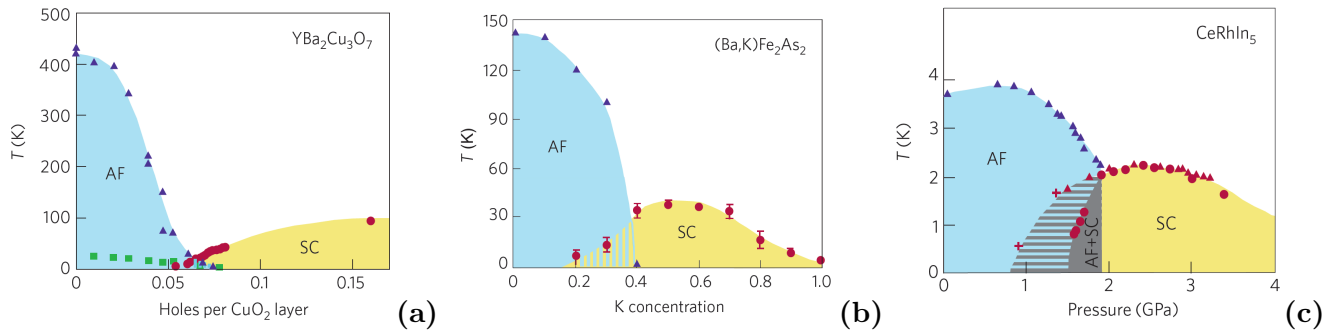


FIGURE 1.1 – Diagramme de phase pour trois supraconducteurs non-conventionnels appartenant respectivement à la famille des cuprates, à celle des supraconducteurs au fer et aux fermions lourds : **(a)** Diagramme de YBa₂Cu₃O_{6+x} en fonction du dopage en oxygène, **(b)** Diagramme de Ba_{1-x}K_xFe₂As₂ en fonction de la concentration en potassium et **(c)** Diagramme de CeRhIn₅ en fonction de la pression appliquée. On peut constater l'existence d'une phase antiferromagnétique avant l'apparition de la supraconductivité avec parfois une zone de coexistence entre les deux phases. Extrait de [Uemura 2009]

1.1.2 Découverte de la résonance de spin

La découverte des supraconducteurs non-conventionnels entraîna une série d'études, notamment par diffusion inélastique de neutrons. Il fut observé dans le spectre d'excitation de ces composés, l'existence d'une excitation magnétique liée à l'état supraconducteur appelée *pic de résonance magnétique* [Rossat-Mignod 1991] [Bourges 1996]. La première découverte de cette excitation fut faite par Rossat-Mignot et *al.* [Rossat-Mignod 1991] dans le cuprate YBa₂Cu₃O_{6.92} (T_c=91K).

Le pic de résonance se caractérise alors comme une excitation localisée à $q_{AF}=(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, L)$ et à une énergie $\Omega_{res} = 41$ meV. Le pic est large en énergie (~ 8 meV) et en \mathbf{Q} (~ 1 distance Cu-Cu). En augmentant la température, on observe une renormalisation du pic c'est-à-dire une diminution de son intensité jusqu'à sa disparition à T_c. Initialement [Rossat-Mignod 1991], une distinction a été faite entre le pic de résonance et le gap de spin. En effet, il était observé (voir la Fig.1.2) une absence d'excitation magnétique jusqu'à 28 meV puis un pic asymétrique dont le maximum était désigné comme le pic de résonance. Les mesures suivantes ont plutôt statué que la résonance correspondait à un large pic centré autour de 41 meV avec un pic qui s'étend de 25 meV à 45 meV (avec une largeur à mi-hauteur de 9 meV) [Bourges 1996]. Ainsi l'apparition de la résonance et l'existence du gap de spin étaient la même chose et non deux phénomènes indépendants comme supposé initialement.

La découverte d'une excitation semblable dans les composés Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ} (T_c = 91 K) [He 2002] et Tl₂Ba₂CuO₄ (T_c = 90 K) [Fong 1999b] laissa penser que la résonance était une propriété générique des supraconducteurs à haute température. Cependant l'existence de résonance ne se limite pas seulement aux cuprates. En effet, il fut observé un phénomène semblable dans les composés fermions lourds UPd₂Al₃ [Blackburn 2006], CeCu₂Si₂ [Stockert 2008] et également CeCoIn₅ objet de cette thèse [Stock 2008]. En plus des composés à fermions lourds, des résonances ont également été découvertes dans les supraconducteurs au fer. Tout d'abord dans Ba_{0.6}K_{0.4}Fe₂As₂ [Christianson 2008] puis dans BaFe_{1.85}Co_{0.15}As₂ [Inosov 2010], BaFe_{1.84}Co_{0.16}As₂ [Lumsden 2009] et également FeSe_{0.4}Te_{0.6} [Qiu 2009].

1.2 Modèles de la résonance

Toutes les excitations appelées "Résonance de spin" partagent des caractéristiques malgré les différences structurales et électroniques (par exemple : électrons 3d pour les cuprates, électrons 4f ou 5f pour les fermions lourds) des composés dans lesquelles elles ont été découvertes. Tout d'abord la résonance apparaît dans un système présentant un gap supraconducteur non-conventionnel. Leur ressemblance a lancé un effort d'unification

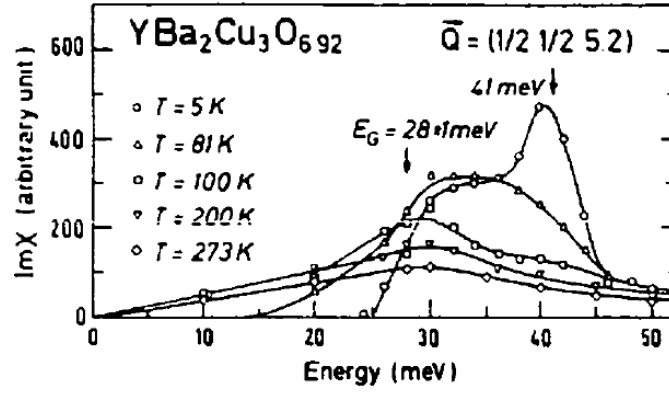


FIGURE 1.2 – $\text{Im}\chi(q, \hbar\omega)$ en unité arbitraire en fonction de l'énergie et de la température pour le composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.92}$. Ce qui était appelé le "gap de spin" E_G est estimé à 28 meV et Ω_{res} à 41 meV [Rossat-Mignod 1991].

pour tenter de décrire toutes les résonances de spin par un modèle commun.

Une première étape fut de trouver une caractéristique commune. En premier lieu, le rapport entre Ω_{res} et $k_B T_c$ fut retenu. Ce rapport était en effet constant dans les cuprates et paraissait être une quantité adaptée. Mais la valeur du rapport est nettement différente dans d'autres composés comme les fermions lourds (voir la figure 1.3) ou les supraconducteurs au Fer. L'autre quantité retenue fut le rapport entre Ω_{res} et $2\Delta_{SC}$ (Δ_{SC} étant le gap supraconducteur) [Yu 2009] qui semble être constant dans tous les composés, avec $\frac{\Omega_{res}}{2\Delta_{SC}} = 0.64$ (voir Fig.1.3). Cependant des mesures récentes indiquent que ce rapport pourrait varier en fonction des composés : par exemple dans $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ [Castellan 2011], on peut observer que le rapport $\frac{\Omega_{res}}{2\Delta_{SC}}$ n'est pas constant en fonction du dopage. En autre exemple, toujours parmi les supraconducteurs au Fer, il aurait été observé une résonance dans LiFeAs [Taylor 2011] qui apparaîtrait à une énergie supérieure à $2\Delta_{SC}$ et serait donc largement amorti par le continuum d'excitations électron-trou. S'il s'agit bien d'une résonance de spin alors le rapport $\frac{\Omega_{res}}{2\Delta_{SC}}$ serait de $1.3(\pm 0.4)$, bien supérieur au ratio obtenu par Yu et *al.* Il est plus délicat de contredire ce ratio dans le cas des fermions lourds, car les mesures de Δ_{SC} sont particulièrement difficiles à réaliser. Aussi si le rapport mesuré semble être conforme à la loi de Yu et *al.*, ces résultats sont à prendre avec précaution. En ce qui concerne les cuprates, le rapport est validé.

Au final, on peut constater qu'aucune relation universelle ne semble exister concernant la résonance de spin, justifiant une certaine diversité de modèles pour décrire cette excitation.

1.2.1 Modèle de l'exciton de spin

La découverte de la résonance dans les cuprates a entraîné le développement de plusieurs modèles pour interpréter ces excitations magnétiques. Le modèle le plus accepté concernant la résonance est, dans une approche itinérante, de considérer la résonance comme un *exciton* de spin.

Susceptibilité magnétique dans un modèle itinérant

L'excitation magnétique, type dans un métal, implique le transfert d'un électron d'un état occupé $|k, \sigma\rangle$ à un état inoccupé $|k + q, -\sigma\rangle$ (c'est-à-dire un trou). La susceptibilité décrivant ces excitations électron-trou est la fonction de Lindhart [Lovesey 1984] :

$$\chi^0(\mathbf{q}, \omega) = \frac{1}{2} (g\mu_B)^2 \sum_k \frac{f(\xi_k) - f(\xi_{k+q})}{\xi_{k+q} - \xi_k - \omega - i0^+} \quad (1.1)$$

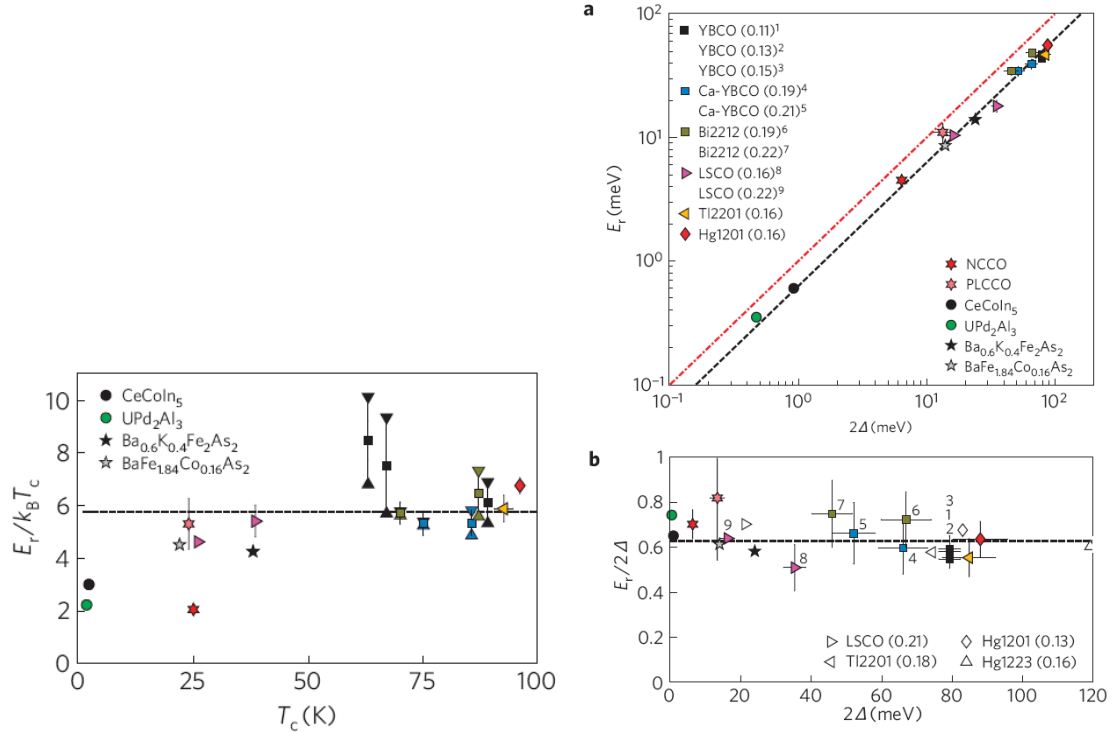


FIGURE 1.3 – **Figure de gauche :** extraite de [Yu 2009] Évolution du rapport $\frac{E_r}{k_B T_c}$ en fonction de T_c **Figure de droite :** extraite de [Yu 2009] (a) Énergie de la résonance en fonction de $2\Delta_{SC}$. La courbe noire correspond au fit linéaire des données. La courbe rouge représente le rapport $E_r = 2\Delta_{SC}$. (b) Évolution du rapport $\frac{E_r}{2\Delta_{SC}}$ en fonction de $2\Delta_{SC}$. La courbe pointillée correspond au fit linéaire de la figure précédente.

ξ_k est la relation de dispersion des quasi-particules, f est la distribution de Fermi. Dans l'état supraconducteur, la susceptibilité devient :

$$\chi^{SC}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{1}{2} (g\mu_B)^2 \sum_k M_{qk}^{\mp} \frac{1 - f(E_k) - f(\pm E_{k+q})}{E_{k+q} \pm E_k - \omega - i0^+} \quad (1.2)$$

avec

$$M_{qk}^{\pm} = \frac{1}{4} \left(1 \pm \frac{\xi_{k+q}\xi_k + \Delta_{k+q}\Delta_k}{E_{k+q}E_k} \right) \quad (1.3)$$

$E_k = \sqrt{\xi_k^2 + \Delta_k^2}$ est la relation de dispersion des quasiparticules excitées dans l'état supraconducteur et Δ_k est le gap supraconducteur dépendant du vecteur d'onde k^1 . La différence entre les susceptibilités χ^0 et χ^{SC} est l'existence d'une énergie minimum $E_{min} = \min[E_{k+q} + E_k]$ pour créer une excitation dans l'état supraconducteur² et la présence d'un facteur de cohérence M_{qk}^{\pm} . On se rend compte que la condition $\Delta_{k+q}\Delta_k < 0$ (c'est-à-dire que le gap change de signe à la surface de Fermi) va augmenter l'intensité des excitations magnétiques car le facteur de cohérence va alors tendre vers 1.

Dans le cas d'un supraconducteur avec un gap de symétrie $d_{x^2-y^2}$, le gap varie comme $\Delta_k = \Delta_m(\cos(k_x) - \cos(k_y))/2$ et on a alors que la condition précédente est satisfaite pour le vecteur d'onde AF (0.5,0.5).

En plus de ce facteur de cohérence qui va amplifier la réponse magnétique, l'interaction va également favoriser

1. On est donc dans le cas d'un supraconducteur non-conventionnel. En effet, un gap supraconducteur conventionnel s est constant dans l'espace (k, ω)

2. En effet, il faut fournir suffisamment d'énergie pour briser les paires de Cooper. L'énergie E_{min} définit ainsi le seuil du continuum de Stoner

la réponse magnétique. En effet, dans l'approximation RPA, la susceptibilité magnétique peut s'écrire :

$$\chi(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\chi^{SC}(\mathbf{q}, \omega)}{1 - U\chi^{SC}(\mathbf{q}, \omega)} \quad (1.4)$$

On constate que si l'interaction magnétique U est forte, alors la susceptibilité magnétique augmente. Ainsi en présence d'une topologie spécifique de la surface de Fermi (*nesting* de la surface de Fermi, présence de point selle,...) et d'une forte interaction, on peut obtenir un état lié de type électron-trou de spin $S=1$ qui peut se développer en dessous du continuum de Stoner. En effet, l'interaction magnétique U va être attractive dans le canal électron-trou et va permettre une recombinaison des excitations élémentaires en mode collectif. Le gain d'énergie accompagnant cette recombinaison va faire passer l'énergie du mode en dessous du continuum, évitant un amortissement de l'excitation. L'énergie du mode est donnée par le pôle de la susceptibilité RPA : $1 - U \text{Re}\chi^{SC}(\mathbf{q}, \omega) = 0$.

Dispersion de la résonance

Dans le cas du modèle de l'exciton, on peut faire l'observation que la position en énergie de la résonance va dépendre de deux facteurs :

- la dépendance en vecteur d'onde de l'interaction $U(\mathbf{q})$
- le seuil du continuum de Stoner ($\omega_c(\mathbf{q})$). En effet, si l'énergie de la résonance devient équivalente à la valeur $\omega_c(\mathbf{q})$, sa durée de vie deviendra très courte par l'amortissement de Landau (décomposition en excitations élémentaires électron-trou).

Le paramètre pertinent retenu dans le cadre du modèle est le seuil $\omega_c(\mathbf{q})$ qui va dépendre de la surface de Fermi. En effet, le seuil va directement dépendre du gap supraconducteur, lui même dépendant de la surface de Fermi. Ainsi il est maximum au vecteur d'onde \mathbf{Q}_{res} puisque les points de la surface de Fermi connectés par ce vecteur d'onde correspondent au maximum du gap supraconducteur. Ils sont appelés *points chauds*. Puis la valeur du seuil va diminuer quand le vecteur \mathbf{Q} va s'éloigner de \mathbf{Q}_{res} et va joindre des points de la surface de Fermi où le gap a une valeur moindre. Finalement quand le vecteur va joindre les *points froids* de surface de Fermi, i.e les points où le gap s'annule, alors $\omega_c(\mathbf{q})$ sera également nul. L'évolution correspondante de χ'' en fonction du vecteur d'onde est montrée sur la figure 1.4.

Le seuil du continuum va donc décrire un dôme autour du vecteur \mathbf{Q}_{res} . On retrouve également des traces de la dispersion à plus haute énergie, puisque le vecteur \mathbf{Q} s'éloigne de \mathbf{q}_n , le vecteur d'onde nodal. Cette dispersion en forme de sablier est observée dans d'autres composés que les cuprates. Nous en reparlons dans les parties spécifiques à chaque famille. Si le modèle de l'exciton de spin est reconnu comme le modèle le plus valide dans les cuprates, plusieurs modèles ont été proposés pour expliquer la résonance de spin. La découverte d'une telle excitation dans d'autres composés a relancé le développement ou l'adaptation d'anciens modèles pour expliquer la résonance.

1.2.2 Modèle du magnon

Ainsi un modèle qui a été développé pour les cuprates a été proposé pour le fermion lourd CeCoIn_5 : le scénario du "magnon" [Chubukov 2008]. Ce modèle applicable pour un système proche d'un ordre antiferromagnétique (AF) propose qu'un mode de magnon existerait du fait des corrélations entre les électrons $4f$. Ce mode présent à $T > T_c$ ne serait pas visible à cause de l'amortissement de Landau. Et à $T < T_c$, grâce au gap supraconducteur, le mode ne serait plus amorti et serait visible dans le spectre d'excitations magnétiques. Une des manières de distinguer ce scénario de l'exciton de spin, serait d'étudier la dispersion. En effet, on a pu voir que dans le cadre de l'exciton de spin que la dispersion est négative en énergie [Eremin 2008]. Au contraire le magnon aurait une dispersion positive [Chubukov 2008]. Ce scénario présente la particularité de pouvoir être applicable même si le gap supraconducteur n'est pas $d_{x^2-y^2}$.

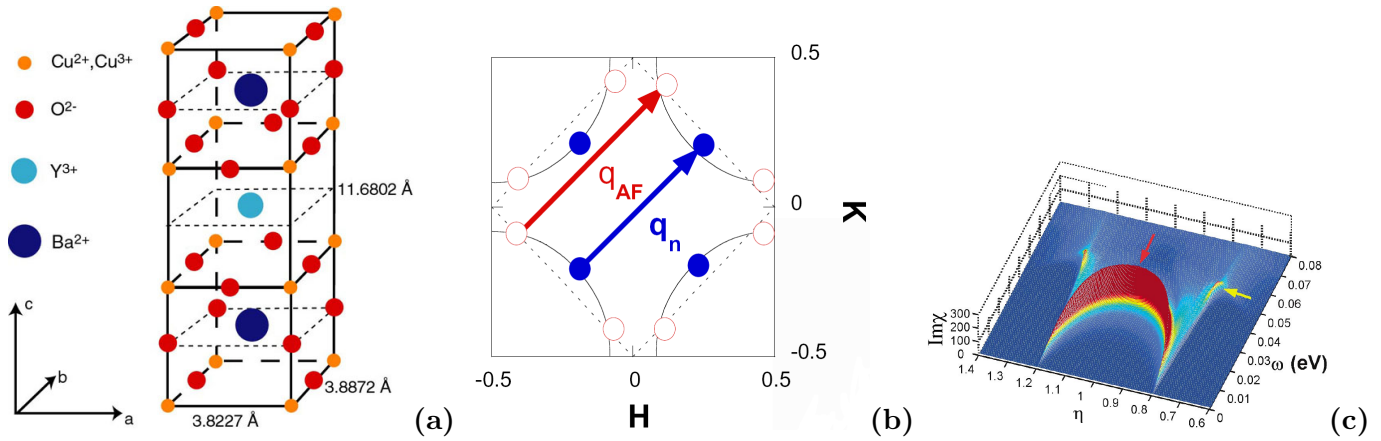


FIGURE 1.4 – (a) : Structure cristallographique du supraconducteur YBa₂Cu₃O_{6+x}. (b) : Description schématique de la forme de la surface de Fermi dans un cuprate. Les cercles rouges indiquent la position des points chauds qui sont connectés par le vecteur q_{AF} . Le vecteur de l'ordre antiferromagnétique est également le vecteur de la résonance dans les cuprates. Les points bleus correspondent quant à eux aux points froids de la surface de Fermi où le gap supraconducteur s'annule. Ils sont reliés par le vecteur q_n (vecteur d'onde nodal). Extrait de [Sidis 2007] (c) : Calcul de la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique, $Im\chi$, dans l'état supraconducteur en utilisant le modèle de l'exciton de spin. On observe la dispersion en forme de sablier [Eremin 2008].

1.2.3 Modèle du "gap de spin"

Un autre modèle est donné par Stockert et *al.* [Stockert 2010]. En effet, dans le composé CeCu₂Si₂, les mesures indiquent l'existence d'un signal quasiélastique au-dessus de T_c . L'ouverture du gap supraconducteur semble entraîner un transfert de poids spectral, l'intensité du signal quasi-élastique étant translaté à plus haute-énergie. L'absence d'excitations avant ce signal peut donner l'impression de voir un pic inélastique apparaître alors qu'il s'agit d'un signal quasi-élastique en présence d'un gap de spin. Cette idée de gap de spin avait déjà été émise par Rossat-Mignot *et al.* lors de la découverte de la résonance [Rossat-Mignod 1991].

Cette théorie est très adaptée aux fermions lourds. En effet, le signal quasi-élastique dans les fermions lourds est associé à des fluctuations de spin. Ces fluctuations sont dues à l'effet Kondo qui entraîne un écrantage des spins par les électrons de conduction. Ainsi par des faibles excitations des électrons de conduction, il est possible de faire varier le spin "vu" par les neutrons. Lorsque le composé devient supraconducteur, les électrons de conduction vont s'apparier et il faudra alors pour réaliser le même type d'excitation fournir en plus une énergie correspondant à deux fois le gap SC.

On peut ensuite supposer que les interactions vont diminuer l'énergie nécessaire à fournir comme pour l'exciton, pour expliquer pourquoi les excitations quasi-élastiques "déplacées par le gap" ont une énergie inférieure à $2 \Delta_{SC}$. L'apparition du signal à un Q particulier pourrait, peut-être, être expliquée par la dépendance en Q des interactions.

L'intérêt de ce modèle est qu'il ne suppose aucune symétrie pour le gap SC comme le modèle du magnon, et la simplicité des mécanismes mis en jeu. Cependant la généralisation de cette approche aux pnictures et aux cuprates ne serait pas immédiate, notamment à cause de l'absence d'effet Kondo dans ces matériaux.

Un cas intéressant à évoquer dans ce cadre est le composé La_{2-x}Sr_xCuO₄. On a longtemps considéré que ce composé présentait un gap de spin. Or des études récentes pourraient laisser croire qu'il s'agirait plutôt d'une résonance de spin [Vignolle 2007], le signal magnétique "gappé" présentant une dispersion en forme de sablier, comme pour le modèle de l'exciton. On est donc dans le cas inverse de CeCu₂Si₂, où la résonance est présentée comme un gap de spin, ici le gap de spin est peut-être un exciton. Ainsi la distinction entre gap de spin et résonance de spin pourrait être plus ténue que l'on suppose.

1.3 La résonance de spin dans les différents composés

La résonance de spin est présente dans plusieurs familles de supraconducteurs. Dans cette partie, nous allons présenter un récapitulatif avec un regroupement en trois familles : les cuprates, les supraconducteurs au Fer et les fermions lourds.

1.3.1 Résonance dans les cuprates

La résonance de spin dans les cuprates a été déjà en partie présentée dans l'introduction et le modèle. En effet, étant la première famille présentant une résonance de spin, le modèle de l'exciton a été basé sur les cuprates. Dans cette sous-partie, nous allons présenter quelques particularités de la résonance dans les cuprates.

Largeur de la résonance

La résonance dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ apparaît à une haute énergie (≈ 40 meV) et présente une grande largeur de ~ 8 meV. Dans cette gamme d'énergie, la résolution des spectromètres est de l'ordre de 5-6 meV. On a souvent présenté le pic de la résonance dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ comme limité par la résolution. Cependant il semblerait que la grande largeur du mode ne soit pas due uniquement à la résolution. En effet, la concentration en oxygène du cuprate joue également un rôle important. L'inclusion d'oxygène dans les cristaux est très difficile à contrôler précisément et ainsi pour une concentration donnée, on a un large gradient de concentration en oxygène. Cela implique que l'on ne mesure pas un pic inélastique mais plutôt une distribution de pics de résonance qui ont lieu à des énergies proches. Cette inhomogénéité de l'échantillon explique également la largeur en Q de l'excitation.

Résonance : mode acoustique et optique

Dans les cuprates avec des doubles plans de CuO_2 comme $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.95}$ ou $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$, il est observé deux résonances de spin. Ces deux résonances sont des réminiscences du couplage AF qui existe entre les deux plans dans l'état normal. Les deux résonances montrent d'ailleurs une évolution en fonction de c , une opposition de phase puisque le mode de basse-énergie dit "acoustique" évolue suivant $\sin^2(\pi zL)$ avec z la distance réduite entre deux plan CuO_2 ($z = d/c$ avec $d=3.3$ Å) alors que le mode de plus haute-énergie dit "optique" évolue suivant une loi en $\cos^2(\pi zL)$. Ainsi suivant le q_L choisi, on observe l'un des deux modes. Il faut également noter que les deux modes ne partagent pas la même énergie à cause de l'interaction AF interplan.

1.3.2 Résonance dans les supraconducteurs au Fer

La découverte de la supraconductivité dans le composé à base de fer et d'arsenic $\text{LaO}_{1-x}\text{F}_x\text{FeAs}$ [Kamihara 2008] a été le prémice d'une véritable "ruée vers l'or" des études de la supraconductivité dans les supraconducteurs à base de Fer. En effet, $\text{LaO}_{1-x}\text{F}_x\text{FeAs}$ présente une température critique de $T_c = 26$ K, pratiquement égale à celle qui avait été découverte dans le premier cuprate. Ainsi les possibilités offertes par ces supraconducteurs semblaient aussi prometteuses que les cuprates pour la supraconductivité haute température.

Les composés appartenant à ces nouvelles gammes de supraconducteur présentent une structure cristalline assez similaire à celle des cuprates. On a des plans de Fe-As au lieu de plans de CuO_2 cependant la nature des couches intermédiaires varie grandement en fonction des familles. On distingue ainsi quatre types de structures cristallines (appelées 1111, 122, 111 et 11, les chiffres correspondant à la composition chimique des cristaux) dans ces supraconducteurs (voir Fig.1.6). Le caractère bi-dimensionnel de ces composés est nettement moins marqué que dans les cuprates mais cependant présente avec des rapports d'intégrales d'échange $\frac{J_{\text{plan}}}{J_{\perp}} \sim 10$ [Lumsden 2010] à comparer à des ratios de 1000 dans les cuprates. On peut cependant noter que la bidimensionnalité joue un rôle important dans la supraconductivité de ces composés. En effet, plus la distance est grande entre les chaînes Fe-As, plus T_c est élevée (présenté également sur la Fig.1.6). Il faut noter que les supraconducteurs au fer présentent des différences avec les cuprates en ce qui concerne le gap supraconducteur. En effet, il n'est pas de type d -wave mais serait un gap de type s_{\pm} , c'est-à-dire que le gap supraconducteur change de signe entre deux poches différentes de la surface de Fermi. Le gap SC autour de chacune des poches

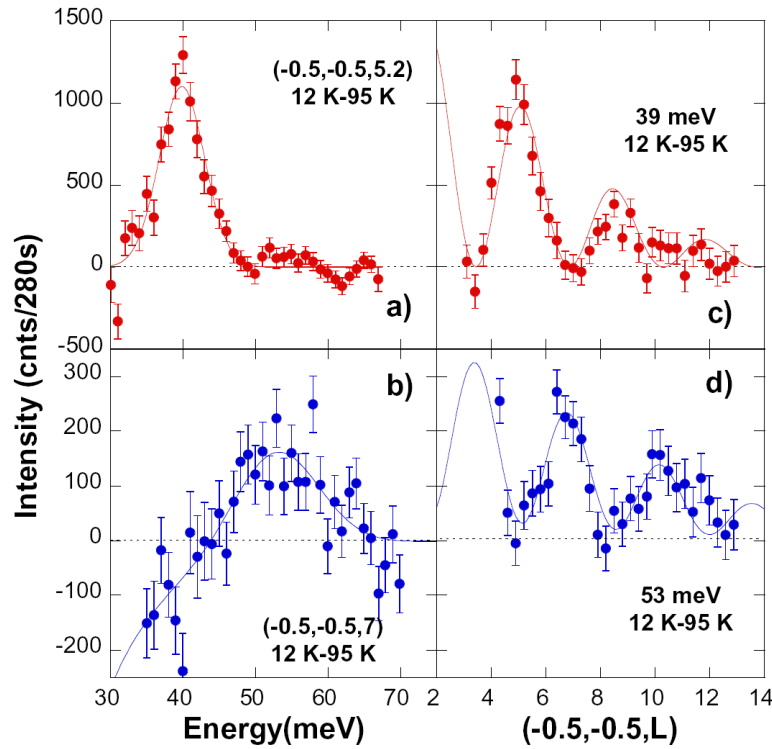


FIGURE 1.5 – Différences entre les modes acoustique (rouges) et optique (bleu) dans le composé $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ sous dopé. On peut observer la modulation en sinus carré pour le mode acoustique alors que le mode optique a une modulation en cosinus carré. Extrait de [Sidis 2007].

est de type s . Par ailleurs, la phase antiferromagnétique parente est métallique et non isolante comme dans les cuprates.

Résonance de spin

La découverte de nouveaux supraconducteurs haute température entraîna une série d'études de diffusion inélastique de neutrons avec pour objectif d'observer l'évolution du spectre magnétique dans ces composés lors de l'établissement de la supraconductivité. Et ainsi en 2008, une expérience réalisée sur $\text{Ba}_{0.6}\text{K}_{0.4}\text{Fe}_2\text{As}_2$ ($T_c = 38$ K) mit en évidence l'apparition d'une excitation magnétique dans l'état supraconducteur [Christianson 2008]. Puis en 2010, dans le même composé mais avec un dopage au Cobalt sur le site du Fer, on observe également l'apparition d'une excitation magnétique liée à l'état supraconducteur [Inosov 2010] (voir Fig.1.7). Les

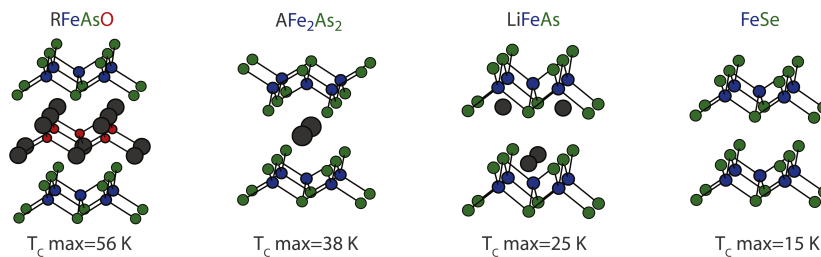


FIGURE 1.6 – Structure cristallographique des supraconducteurs au Fer de type 1111, 122, 111 et 11. Dans chaque cas, les plans FeAs (ou FeSe) sont les mêmes. La différence réside dans l'espace entre les couches. Les T_c maximums (à pression ambiante) de chaque famille sont présentées en dessous des structures. On peut constater que l'éloignement des plans contribue de manière nette à l'augmentation de la température critique. Extrait de [Lumsden 2010].

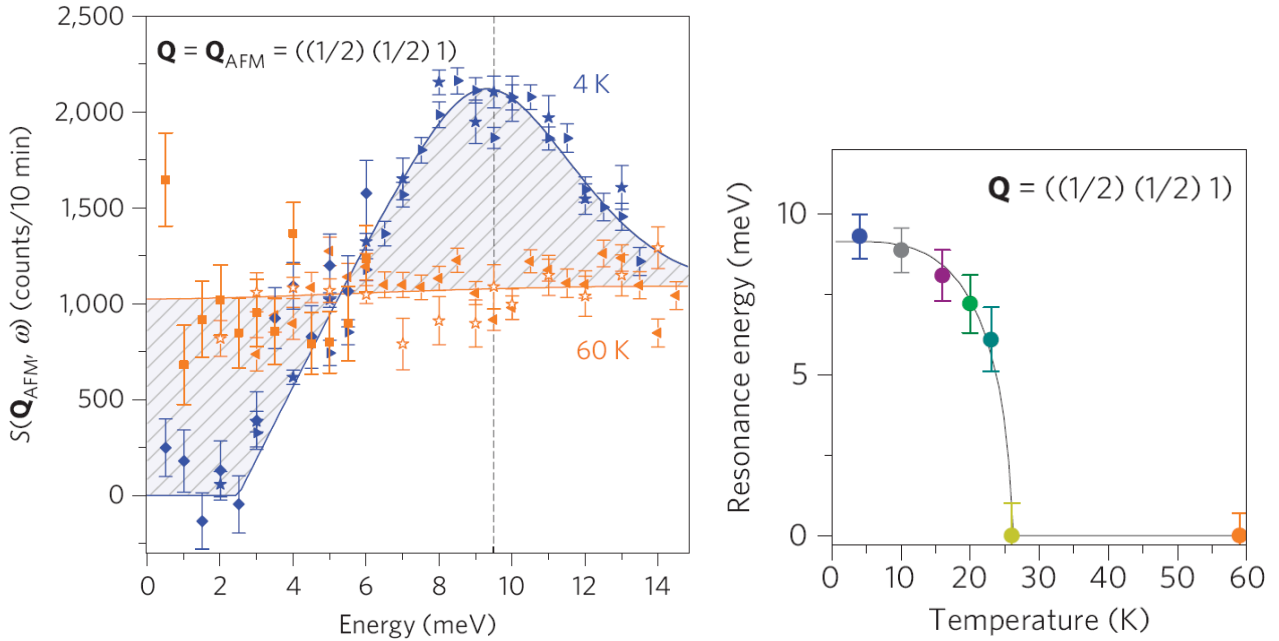


FIGURE 1.7 – **Figure de gauche** : Spectre inélastique en énergie au vecteur $Q_{AF}=(1/2,1/2,1)$ à $T=4K$ et à $T=60K$. Les données ont été corrigées du bruit de fond et les lignes sont des guides pour les yeux. Les différents symboles utilisés, carrés, triangles et étoiles, correspondent aux données obtenues respectivement sur le spectromètre trois-axes Panda, le spectromètre thermique Puma, tous les deux situés au FRM-II, et sur le spectromètre 2T situé au LLB. **Figure de droite** : Évolution de l'énergie de la résonance en fonction de la température. Les figures sont extraites de [Inosov 2010].

supraconducteurs au Fer présentent donc également des résonances de spin.

Comme on le constate sur la Fig.1.7, l'énergie de la résonance diminue avec la température avec une évolution très proche d'un paramètre d'ordre et qui s'annule à la transition. Cette évolution en température est en opposition avec ce qui est observé dans les cuprates où la résonance diminue en intensité quand la température se rapproche de T_c .

De nombreuses expériences sur les supraconducteurs au fer ont suivi cette découverte aboutissant à la découverte de résonance dans de nombreux types de composés (Voir le tableau V dans [Inosov 2011] qui récapitule tous les paramètres des résonances de spin dans les supraconducteurs au fer) tels $BaFe_2As_2$ dopés Potassium (sur le site du Baryum), Cobalt et Nickel (sur le site du Fer) et Phosphore (sur le site de l'Arsenic), mais également $LaFeAsO_{1-x}F_x$, $Li_{1+\delta}FeAs$ et finalement $FeTe_{1-x}Se_x$. Ces supraconducteurs étant la source de très nombreuses études, on peut s'attendre à de nombreux résultats sur les résonances de spin dans ces composés dans les prochaines années.

1.3.3 Résonance dans les fermions lourds

Les composés à fermions lourds sont des intermétalliques à base de terre rare ou d'actinide qui présentent de très fortes corrélations électroniques produisant des masses effectives de quasi-particules de l'ordre de 100 à 1000 fois la masse de l'électron libre. Trois composés dans les fermions lourds présentent des résonances : UPd_2Al_3 , $CeCu_2Si_2$ et $CeCoIn_5$. Dans cette section, nous aborderons les deux premiers composés, $CeCoIn_5$ étant bien sûr le sujet des chapitres suivants. On peut déjà remarquer que les fermions lourds bien qu'étant des composés à fortes corrélations électroniques comme les cuprates ont des différences avec ceux-ci.

- Les fermions lourds vont présenter un état métallique dans l'état AF, comme les supraconducteurs au fer, mais contrairement aux cuprates qui sont isolants.
- Le caractère bi-dimensionnel des fermions lourds ayant une résonance est moins marqué que dans les cuprates.

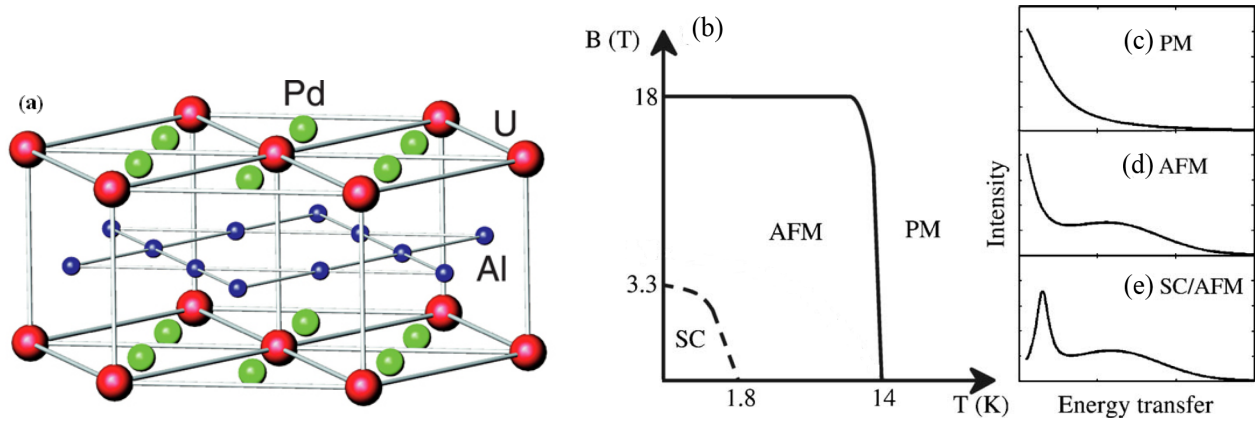


FIGURE 1.8 – (a) : Structure cristallographique de UPd_2Al_3 . (b) : Schéma du diagramme (B,T) de phase de UPd_2Al_3 . La ligne pointillé indique que la phase supraconductrice apparaît au sein de l'ordre AF. Les figure (c) à (e) présentent l'intensité de la diffusion inélastique de neutron au vecteur antiferromagnétique dans les différentes phases du composé. (c) correspond à la réponse paramagnétique, (d) à la réponse de l'état antiferromagnétique et (e) à l'état SC. On peut constater dans la figure (e) l'apparition de la résonance. Extrait de [Blackburn 2006].

UPd_2Al_3

Le premier composé dans lequel fut découvert une résonance fut UPd_2Al_3 [Metoki 1997] [Sato 2001]. Ce composé présente une structure hexagonale montrée sur la Fig.1.8 et a la particularité que la phase supraconductrice ($T_c = 1.8$ K) apparaît au sein d'un ordre antiferromagnétique ($T_N = 14.3$ K) [Geibel 1991]. Le diagramme de phase est présenté sur la Fig.1.8. On peut noter la différence entre ce composé et les cuprates puisque l'ordre antiferromagnétique est toujours existant quand la supraconductivité apparaît.

Le pic de résonance apparaît à une énergie de 0.35 meV au vecteur de l'ordre magnétique $\mathbf{Q}_{AF}=(0,0,\frac{1}{2})$ (voir Fig.1.9) avec une largeur de 0.02 meV. On peut déjà constater que l'on est dans une gamme d'énergie bien inférieure à celle des cuprates, en accord avec la différence de température critique. Contrairement aux cuprates où le pic de résonance a un caractère bidimensionnel avec une résonance non centrée suivant l'axe- c , dans UPd_2Al_3 le vecteur \mathbf{Q}_{res} a une composante suivant c . L'évolution de la résonance en fonction du vecteur d'onde a également été étudiée révélant une dispersion positive de l'excitation dans le plan et suivant l'axe- c [Hiess 2006]. Cette dispersion ne suit pas la dispersion type exciton en "forme de sablier". On peut remarquer que le gap supraconducteur a la symétrie de la phase antiferromagnétique, i.e qu'il change de signe pour le vecteur d'onde antiferromagnétique. On parle d'état "s-antiferromagnétique". Ainsi UPd_2Al_3 serait un supraconducteur conventionnel si on se réfère à une définition basée sur la symétrie.

CeCu_2Si_2

CeCu_2Si_2 a été le premier fermion-lourd supraconducteur, découvert en 1979 [Steglich 1979]. Le composé présente la particularité que les monocristaux obtenus peuvent soit présenter une onde de densité de spin (spin density wave ou SDW en anglais) [Stockert 2004] soit être supraconducteurs ou alors être dans un état mixte (à la fois supraconducteur et présentant une SDW). On distingue ainsi les composés de type A (antiferromagnétique) ($T_N \approx 0.8$ K), les composés de type S (supraconducteur) ($T_c \approx 0.6$ K) et les composés mixtes de type A/F. La nature du cristal est déterminée par l'excès (SC) ou le déficit (SDW) de Cu, voir Fig.1.10. La structure cristallographique est tétragonale-centrée de type $I4/mmm$ (voir Fig.1.10) et ne présente pas un caractère bi-dimensionnel marqué contrairement aux cuprates. La surface de Fermi montre par contre un aspect bi-dimensionnel avec des quasi-colonnes suivant l'axe- c , voir Fig.1.11.

Le composé CeCu_2Si_2 a été l'un des composés les plus étudiés parmi les fermions lourds, cependant ce n'est

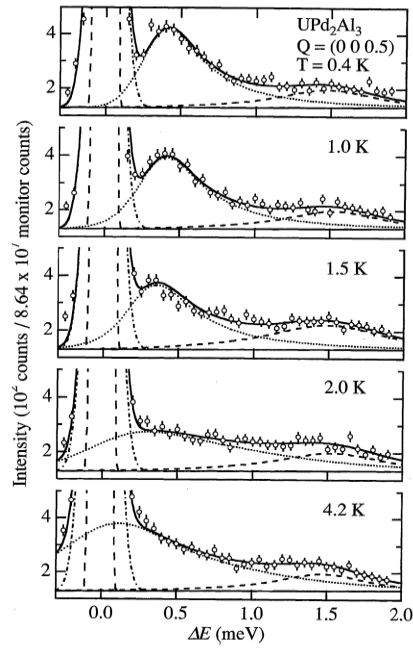


FIGURE 1.9 – Spectre en énergie de UPd_2Al_3 au vecteur $Q_{res} = (0,0,0.5)$ à $T=0.4$ K, 1.0 K, 1.5 K, 2.0 K et 4.2 K. On peut constater l'apparition de la résonance à $E=0.35$ meV. Extrait de [Metoki 1997]

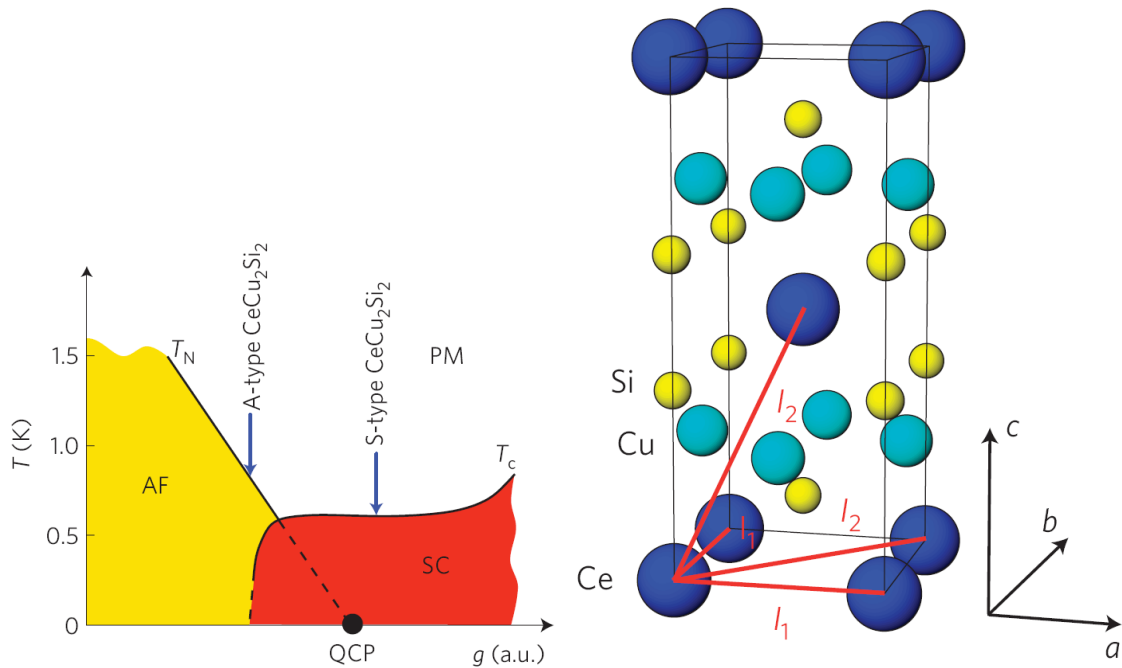


FIGURE 1.10 – **Figure de gauche :** Diagramme de phase de CeCu_2Si_2 en fonction de la constante effective de couplage(g). La constante g varie en fonction de la pression hydrostatique et de la composition (excès de cuivre). La position des composés de type A ou S sont indiqués. **Figure de droite :** Structure cristallographique de CeCu_2Si_2 . Les l_1 et l_2 correspondent aux constantes d'échange entre premier et second voisins. Les deux figures sont extraites de [Stockert 2010]

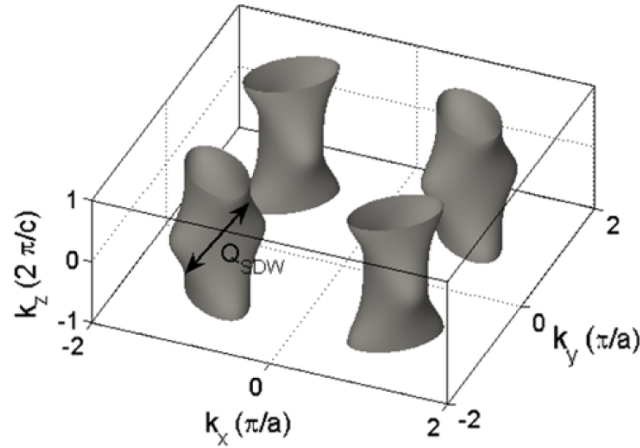


FIGURE 1.11 – Surface de Fermi de CeCu_2Si_2 de la principale bande de quasiparticules, obtenu par un calcul de bande. Le vecteur \mathbf{Q}_{SDW} correspond au vecteur de l'ordre AF. On peut constater que la surface de Fermi est composée de colonnes suivant l'axe- c . La figure est extraite de [Eremin 2008]

qu'en 2008 que l'on y a découvert une résonance de spin [Stockert 2008]. La résonance apparaît au vecteur incommensurable $\mathbf{Q}_{inc}=(0.215,0.215,1.458)$. Il s'agit de la seule résonance dont le vecteur est incommensurable. Ce vecteur correspond au nesting de la Surface de Fermi (et également au vecteur de la phase AF des composés de type A ou A/S). On peut voir le spectre inélastique avec l'apparition de la résonance sur la figure 1.12. On observe que le pic de résonance apparaît aux alentours de 0.2 meV mais que l'excitation est très asymétrique et très large et s'étend jusqu'à 2 meV. La longueur de corrélation de la résonance dans le plan est de $\xi_a \sim 25 \text{ \AA}$.

En ce qui concerne la dispersion, les mesures effectuées par Stockert *et al.* indiquent que la dispersion est linéaire et positive autour de \mathbf{Q}_{res} (voir Fig.1.12). Ce résultat est en opposition avec les observations dans les cuprates où la dispersion est en forme de sablier. Ces différents résultats ont amené à l'idée que la résonance de spin dans CeCu_2Si_2 serait due à un transfert de poids spectral causé par l'apparition du gap SC. Ce modèle a été présenté dans la partie précédente et semble particulièrement adapté aux observations et à la physique de CeCu_2Si_2 .

1.3.4 Conclusion sur les fermions lourds

On peut constater que les deux fermions lourds présentant une résonance partagent peu de points communs et sont très différents des cuprates. Les résonances ne vont pas présenter un caractère 2D mais au contraire vont présenter une dispersion suivant l'axe- c . De plus, la résonance apparaît à un vecteur incommensurable dans CeCu_2Si_2 , cas unique parmi les composés présentant une résonance.

1.4 Conclusion

On peut finalement conclure que les résonances de spin sont des excitations magnétiques confinées à l'état supraconducteur. Cependant, il paraît difficile de généraliser les observations faites sur chaque composé et de vouloir appliquer un modèle commun pour toutes les expliquer.

En effet, on a montré lors de cette partie que si les résonances de spin partagent des caractéristiques communes, il existe de nombreux points de divergence comme le comportement en température, les vecteurs \mathbf{Q} d'apparition et la dispersion de l'excitation. Ces différences ont donc amenés à différents modèles. Et si l'*exciton de spin* reste le modèle phare pour décrire les résonances, on a pu constater qu'il correspondait mal à plusieurs observations expérimentales faites dans les fermions lourds. Dans les pnictures, ce modèle semble

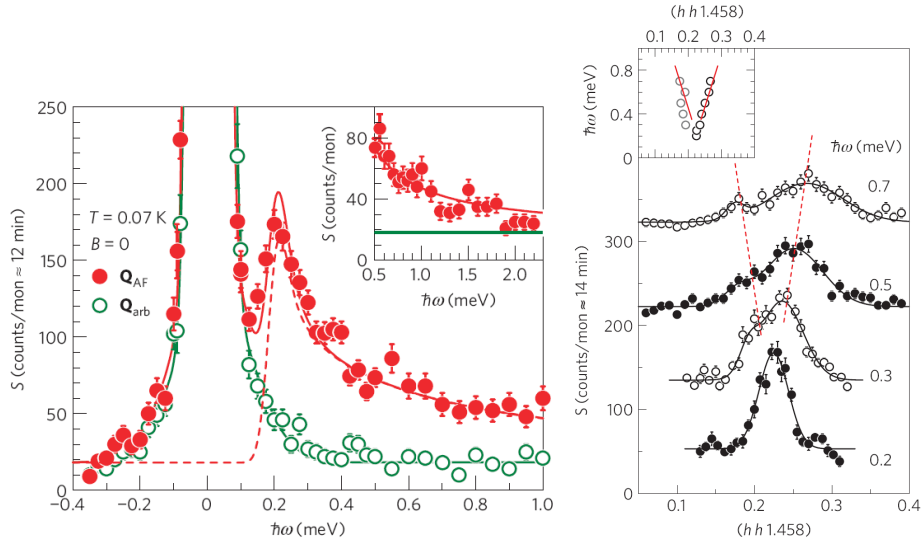


FIGURE 1.12 – **Figure de gauche :** Spectre inélastique de diffusion de neutron dans l'état SC (à $T = 0.07$ K) au vecteur $\mathbf{Q} = \mathbf{Q}_{AF}$ et au vecteur $\mathbf{Q}_{arb} = (0.1, 0.1, 1.6)$. La courbe pointillée correspond à un fit lorentzien quasiélastique auquel on ajoute un spin gap et une augmentation de la densité d'état au dessus du gap. La courbe en trait plein inclut ce fit en plus d'un fit du signal incohérent. L'insert montre que le signal magnétique s'étend au moins jusqu'à 2 meV. **Figure de droite :** Dépendance de la résonance en fonction du vecteur \mathbf{Q} dans CeCu_2Si_2 pour $T = 0.06$ K pour différentes énergies. Les lignes correspondent à des fits gaussiens et les lignes pointillées à des guides pour les yeux. L'insert correspond à la dispersion de l'excitation magnétique obtenue par les spectres en \mathbf{Q} . La dispersion est ajustée grâce à une dépendance linéaire. Extrait de [Stockert 2010].

pour le moment fonctionnel même si quelques expériences indiquent des contradictions, notamment pour le comportement en champ [Li 2011] dont nous reparlerons plus tard.

Dans la suite de cette thèse, nous allons présenter en détails les caractéristiques de la résonance dans CeCoIn_5 et étudier son comportement en champ magnétique et en fonction des impuretés. Nous discuterons les résultats obtenus par rapport au cadre théorique existant et notamment le modèle de l'exciton. Des comparaisons seront également menées entre les résultats observés dans CeCoIn_5 , les cuprates et les supraconducteurs au Fer.

Chapitre 2

Techniques expérimentales

Dans ce chapitre, nous allons présenter les différentes techniques de mesure utilisées lors des expériences réalisées dans cette thèse. Nous mettrons une emphase particulière sur la diffusion inélastique de neutrons, technique phare de ce manuscrit.

2.1 Chaleur spécifique

Introduction La chaleur spécifique est la quantité d'énergie nécessaire pour élever la température de 1g de substance de 1 K. On définit la chaleur spécifique à pression constante $C_p = (\frac{\partial U}{\partial T})_p$ par rapport à l'énergie interne U ou par rapport à l'entropie $C_p = \frac{1}{T}(\frac{\partial S}{\partial T})$. La chaleur spécifique étant une valeur dépendante de l'énergie interne, elle montrera donc une anomalie lorsque le système subira une transition de phase. Cette particularité rend la mesure de chaleur spécifique particulièrement utilisée pour déterminer les températures critiques. Dans le travail présenté, ce fut la principale utilisation de cette technique de mesure. Il faut cependant noter que la chaleur spécifique est une technique avec de nombreuses possibilités, pouvant apporter de nombreuses informations sur la dynamique et les caractéristiques d'un système. Mais ce type de mesure ne rentre pas dans l'objectif de ce travail qui se focalise principalement sur la diffusion de neutrons. La chaleur spécifique va correspondre à la sommation de différentes contributions :

$$C = C_{\text{électronique}} + C_{\text{Phonons}} + C_{\text{magnétique}} + C_{\text{nucléaire}} \quad (2.1)$$

Technique de mesure Les mesures de chaleur spécifique ont été réalisées avec un appareil commercial PPMS (Physical Property Measurements System) fabriqué par Quantum Design. La mesure est faite par relaxation ; une diode chauffe le matériau très faiblement (1 ou 2% de sa température) pendant un temps très court. Puis on mesure le temps de décroissance de la température. Pour plus de détails sur le PPMS, on peut se référer à la publication suivante [Lashley 2003].

2.2 Diffusion inélastique de neutrons

Les mesures de cette thèse ont été faites majoritairement par diffusion inélastique de neutrons. Dans ce chapitre, nous présentons quelques notions de diffusion inélastique de neutrons et du fonctionnement d'un spectromètre trois-axes. Pour une présentation succincte et claire de la diffusion inélastique de neutrons, on peut citer le livre de G. L. Squire [Squire 1997], pour plus de détails le livre de W. Marshall et S. W. Lovesey [Marshall 1971] reste incontournable. Pour une approche plus expérimentale centrée sur le spectromètre trois-axes, le livre de G. Shirane et *al.* [Shirane 2002] est particulièrement adapté. Enfin pour une présentation simple et claire du spectromètre trois-axes et de la diffusion de neutrons, on peut citer l'article de revue de Yamani et *al.* [Yamani 2010].

Caractéristiques du neutron Découvert par Chadwick en 1932 (découverte qui lui valut le prix Nobel en 1935), le neutron est une particule des plus adaptée pour l'étude de la matière condensée. Il s'agit d'une particule de charge neutre, contrairement à l'électron, avec un spin $S=\frac{1}{2}$ et en conséquence un moment magnétique de $1.913 \mu_N$ (Magnéton nucléaire). Le neutron possède également la particularité d'avoir une masse de valeur proche de celle du proton avec $m_n=1.675 \times 10^{-24}$ g. Le neutron peut avoir une énergie typique entre 1 et 100 meV en fonction du milieu modérateur utilisé adapté pour l'étude des excitations dans les solides ou les liquides. On définit ainsi les neutrons dit "froids" qui ont une énergie de l'ordre de quelques meV, les neutrons "thermiques" avec une énergie aux alentours de 10-20 meV et les neutrons "chauds" qui ont une énergie supérieur à 30 meV. La production du neutron peut se faire via deux types de sources :

- les réacteurs de recherche où les neutrons produits par fission de l'uranium sont modérés à température ambiante. L'utilisation de sources froide ou chaude permet d'élargir la gamme d'énergie des neutrons produits.
- les sources à spallation qui vont produire un faisceau de neutrons pulsés et qui permettent d'atteindre de hautes valeurs d'énergie pour les neutrons (jusqu'à 1000 meV).

En interagissant avec la matière, le neutron va échanger une quantité d'énergie E et de moment \mathbf{Q} défini par :

$$\mathbf{Q} = \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f \quad (2.2)$$

$$E = E_i - E_f \quad (2.3)$$

Dans ces équations traduisant la conservation de moment et d'énergie du neutron, E_i est l'énergie initiale du neutron et E_f son énergie finale. \mathbf{k}_i correspond au vecteur d'onde initial du neutron avec $k_i = \frac{2\pi}{\lambda}$, où λ est la longueur d'onde, et de même \mathbf{k}_f est le vecteur d'onde final du neutron après son interaction avec la matière.

Diffusion du neutron Quand un neutron est diffusé, il ne perturbe que faiblement le système et cause une transition de l'échantillon d'un état quantique à un autre mais ne change pas la nature des états quantiques impliqués. Ainsi il est possible d'utiliser la règle d'or de Fermi pour obtenir la section efficace de diffusion. Si on considère une interaction V , la section efficace différentielle de diffusion est

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{k_f}{k_i} \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \sum_{\lambda_i \lambda_f} p_{\lambda_i} |\langle k_f \lambda_f | \hat{V} | k_i \lambda_i \rangle|^2 \delta(E + E_{\lambda_i} - E_{\lambda_f}) \quad (2.4)$$

avec Ω l'angle solide de diffusion, λ_i l'état initial et λ_f l'état final du système diffusant le neutron et p_{λ_i} la probabilité que le système soit dans l'état λ_i . Le neutron étant une particule neutre, il ne sera pas affecté par l'interaction coulombienne mais par l'interaction atomique et magnétique. Nous présenterons brièvement les formules de chaque interaction :

Diffusion atomique La diffusion atomique du neutron est traitée avec un potentiel d'interaction assimilé à une fonction de Dirac en \mathbf{r} (aussi appelé pseudo-potentiel de Fermi) :

$$V = \frac{2\pi\hbar^2}{m} \sum_i b_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_i) \quad (2.5)$$

avec \mathbf{r} la position du neutron, \mathbf{R}_i la position d'un atome i et b_i la longueur de diffusion nucléaire de l'atome i . La longueur de diffusion nucléaire est propre à chaque atome, et n'est pas proportionnelle au numéro atomique Z (comme pour les rayons-X). La longueur de diffusion nucléaire moyenne appelée longueur de diffusion cohérente est définie comme $\bar{b} = \sum_i f_i b_i$ avec f_i l'abondance isotopique. De même on définit la longueur de diffusion incohérente comme la différence entre la valeur moyenne et la variance, $b_{incohérent}^2 = \bar{b}^2 - \overline{b^2} = \sum_i f_i b_i^2 - (\sum_i f_i b_i)^2$. La Fig.2.1 montre l'évolution de la longueur de diffusion cohérente.

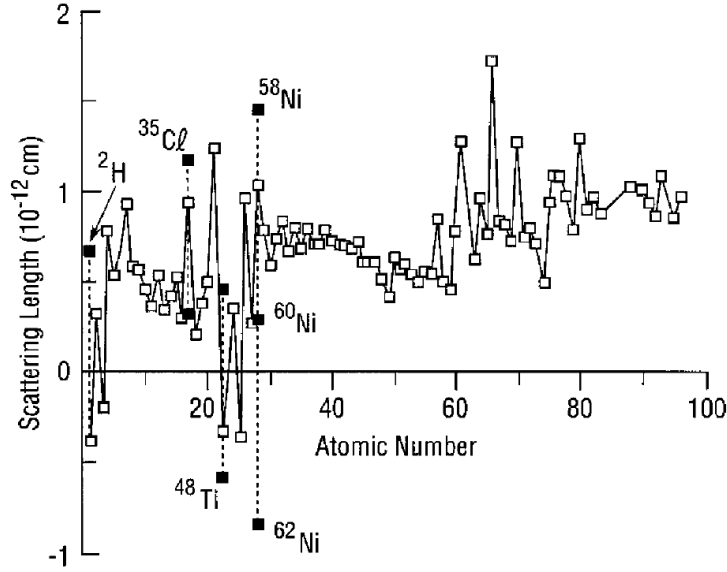


FIGURE 2.1 – Évolution de la longueur de diffusion cohérente en fonction du numéro atomique. Les longueurs de diffusion cohérente pour différents isotopes sont affichées par des carrés noirs. La longueur de diffusion cohérente pour un élément correspond à la moyenne sur les isotopes pondérée par leur abondance, la variance donne, quant elle, la longueur de diffusion incohérente. Extrait de [Price 1986]

Si on considère l'approximation de Born, c'est-à-dire que les fonctions d'onde des neutrons initiales et finales sont des ondes planes, on obtient pour la diffusion atomique, la section efficace différentielle suivante :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{k_f}{k_i} \sum_{\lambda_i \lambda_f} p_{\lambda_i} |\langle k_f \lambda_f | \sum_l b_l e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_l} | k_i \lambda_i \rangle|^2 \delta(E + E_{\lambda_i} - E_{\lambda_f}) \quad (2.6)$$

Si on sépare maintenant la section efficace différentielle entre sa contribution cohérente et incohérente, on obtient pour un système mono-atomique :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} \right)_{coh} + \left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} \right)_{incoh} \quad (2.7)$$

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} \right)_{coh} = \frac{k_f}{k_i} \frac{\bar{b}^2}{2\pi\hbar} \sum_{l,l'} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} e^{i\mathbf{Q}[\mathbf{r}_l(t) - \mathbf{r}_{l'}(0)]} \quad (2.8)$$

$$\left(\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} \right)_{incoh} = \frac{k_f}{k_i} \frac{\bar{b}^2 - \bar{b}^2}{2\pi\hbar} \sum_{l,l'} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} e^{i\mathbf{Q}[\mathbf{r}_l(t) - \mathbf{r}_{l'}(0)]} \quad (2.9)$$

La diffusion incohérente est pleinement exploitée dans certains types d'expériences (notamment celles liées aux systèmes organiques et biologiques en jouant sur la différence de diffusion incohérente entre l'hydrogène et son isotope le deutérium). Cependant dans cette thèse, le signal incohérent constitue un bruit de fond car il n'est pas lié à la dynamique magnétique que nous souhaitons étudier. La diffusion nucléaire cohérente va, quant à elle, être responsable des pics de Bragg (pics élastiques liés à la structure) et des pics inélastiques ($E \neq 0$) liés à la dynamique du système (comme les phonons dans un cristal).

Diffusion magnétique Puisque le neutron a un moment magnétique, il va également être sensible au moment magnétique de la matière via l'interaction dipôle-dipôle. Le potentiel d'interaction s'écrit : $V = -\gamma\mu_N\hat{\sigma} \cdot \mathbf{H}$ avec γ le rapport gyromagnétique, $\hat{\sigma}$ l'opérateur de spin de Pauli et \mathbf{H} le champ magnétique dû aux électrons non appariés. Les étapes de calculs sont décrites avec précision dans [Squire 1997] et [Lovesey 1984]. La diffusion

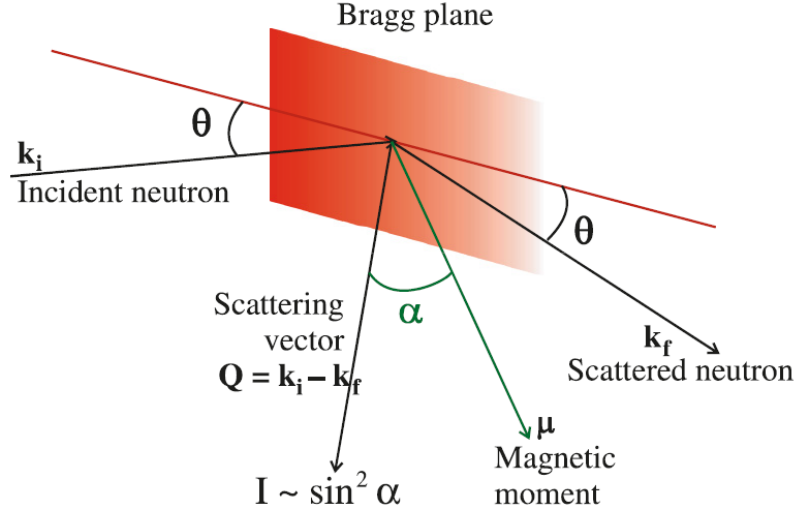


FIGURE 2.2 – Représentation de la diffusion magnétique. L'intensité du signal sera nulle si le vecteur de diffusion et le moment magnétique (ou la polarisation des excitations magnétiques) sont parallèles. Extrait de [Yamani 2010]

magnétique va également engendrer, comme la diffusion nucléaire, des pics de Bragg magnétiques liés à la diffusion élastique. Cependant si on se limite à la partie dynamique étudiée dans cette thèse, on peut écrire la diffusion magnétique pour des neutrons non-polarisés comme :

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{N}{\hbar} \frac{k_f}{k_i} p^2 e^{-2W} \sum_{\alpha,\beta} \left(\delta_{\alpha,\beta} - \hat{Q}_\alpha \hat{Q}_\beta \right) S_{\alpha\beta}(\mathbf{Q}, \omega) \quad (2.10)$$

N est le nombre d'atomes magnétiques, e^{-2W} est le facteur de Debye-Waller qui traduit les déplacements atomiques, p est l'amplitude de diffusion magnétique qui vaut

$$p = \left(\frac{\gamma r_0}{2} \right) g f(\mathbf{Q}) \quad (2.11)$$

avec g le facteur de Landé, r_0 le rayon classique de l'électron ($r_0 = 0.282 \cdot 10^{-12}$ cm) et $f(\mathbf{Q})$ le facteur de forme magnétique, i.e la transformée de Fourier de la densité de spin de l'ion magnétique considéré. L'ordre de grandeur de la diffusion magnétique est de 10^{-24} cm², i.e similaire à la diffusion nucléaire.

$S^{\alpha\beta}(\mathbf{Q}, \omega)$ est la fonction de diffusion définie par :

$$S^{\alpha\beta}(\mathbf{Q}, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} \sum_{l,l'} e^{i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}_l} \langle S_l^\alpha(0) S_{l'}^\beta(t) \rangle \quad (2.12)$$

Il s'agit donc de la transformée de Fourier dans l'espace et le temps de la fonction de corrélation entre la composante α d'un spin d'un atome l et la composante β d'un spin d'un atome l' . Un paramètre fondamental de l'équation 2.10 est le terme $\delta_{\alpha,\beta} - \hat{Q}_\alpha \hat{Q}_\beta$ indiquant que l'interaction magnétique va dépendre de la polarisation perpendiculaire au vecteur \mathbf{Q} des fluctuations magnétiques. Ainsi une fluctuation magnétique suivant la direction de \mathbf{Q} n'entraînera pas de diffusion inélastique. Un schéma de la diffusion est présenté sur la figure 2.2.

La fonction de diffusion peut-être reliée à la partie imaginaire de la susceptibilité magnétique dynamique du système par le théorème de fluctuations-dissipation :

$$S^{\alpha\beta}(\mathbf{Q}, \omega) = \frac{1}{\pi} \frac{1}{1 - e^{-\omega/k_B T}} \chi''_{\alpha\beta}(\mathbf{Q}, \omega) \quad (2.13)$$

La partie réelle $\chi'_{\alpha\beta}(\mathbf{Q}, \omega)$ est reliée à la partie imaginaire par la relation de Kramers-Krönig :

$$\chi'_{\alpha\beta}(\mathbf{Q}, \omega) = \frac{1}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\chi''_{\alpha\beta}(\mathbf{Q}, \omega_0)}{\omega_0 - \omega} d\omega_0 \quad (2.14)$$

On peut donc noter que les mesures de diffusion de neutrons donnent directement accès à la partie imaginaire de la susceptibilité dynamique faisant de la diffusion de neutron un outil idéal pour étudier les propriétés magnétiques dynamiques d'un système.

2.3 Le spectromètre trois-axes

On a pu constater que la diffusion de neutron était un outil idéal pour l'étude de la matière condensée. Il reste à présenter comment cette technique est mise en oeuvre. Dans cette partie, nous allons faire une brève présentation du principal type de spectromètre utilisé dans cette thèse : le spectromètre trois-axes (appelé *Triple-Axis Spectrometer* en anglais ou **TAS**). Le schéma d'un TAS typique est présenté sur la Fig.2.3.

Un faisceau de neutrons, produit par le réacteur, est amené au spectromètre grâce à des guides de neutrons. Le faisceau incident est monochromatisé par une réflexion de Bragg sur un cristal (logiquement appelé monochromateur) ainsi la sélection du vecteur d'onde \mathbf{k}_i se fait par la rotation du cristal. Les neutrons diffusés ayant le vecteur \mathbf{k}_i vont ensuite interagir avec l'échantillon puis une nouvelle sélection des neutrons sera faite par une nouvelle réflexion de Bragg sur un cristal (nommé analyseur) qui va réfléchir les neutrons ayant un vecteur d'onde \mathbf{k}_f . Ainsi le choix de l'énergie que le neutron a échangé avec le système est déterminé par les rotations du monochromateur et de l'analyseur, alors que le choix de l'échange de quantité de mouvement \mathbf{Q} (pour rappel $\mathbf{Q}=\mathbf{k}_i-\mathbf{k}_f$) est réalisé par la rotation de l'échantillon sur lui-même et par la rotation de l'analyseur autour de l'échantillon (angle de diffusion). Ces trois axes de rotation ont donné le nom au spectromètre.

Le monochromateur et l'analyseur diffusent la plupart du temps en condition de Bragg. On devinera donc qu'un TAS nécessitera un vaste espace pour réaliser toutes les rotations. Une manière de réduire l'espace nécessaire est l'utilisation d'un double monochromateur qui permet de s'affranchir de la rotation du spectromètre quand \mathbf{k}_i change. Cette solution a été choisie, par exemple, pour les spectromètres à neutrons froids 4F1 et 4F2 au Laboratoire Léon Brillouin à Saclay.

Dans la pratique, la mesure est effectuée en fixant soit \mathbf{k}_i soit \mathbf{k}_f . Une autre contrainte est due aux lois de conservation (2.3 et 2.2) qui imposent des conditions géométriques. Ces conditions sont résumées par l'expression "fermer le triangle". En effet, si on représente l'espace réciproque de la diffusion inélastique (voir figure 2.4), on constate que \mathbf{k}_f , \mathbf{k}_i et \mathbf{Q} forment un triangle.

Pour un \mathbf{k}_f fixé, on a la relation suivante

$$\frac{\hbar^2 Q^2}{2m_n} = 2E_i - \hbar\omega - 2\sqrt{E_i(E_i - \hbar\omega)}\cos\theta \quad (2.15)$$

Ainsi si on fixe \mathbf{k}_f , on pourra parcourir une certaine gamme de l'espace (\mathbf{Q}, ω) mais certaines valeurs seront inaccessibles et il faudra modifier \mathbf{k}_f pour pouvoir étudier une autre gamme (\mathbf{Q}, ω) .

Ordres supérieurs et filtres La détermination de \mathbf{k}_i et \mathbf{k}_f se fait par des réflexions de Bragg sur des monocristaux. Cependant un des problèmes est la réflexion d'ordre supérieur. En effet, en condition de Bragg, le faisceau de neutrons contiendra également les neutrons ayant des vecteurs d'ondes $n\mathbf{k}$ (avec n entier). Une manière de s'affranchir de ces réflexions est l'utilisation de filtres installés sur le trajet du faisceau de neutron. Les filtres les plus utilisés lors des expériences avec des neutrons thermiques et froids sont le filtre en graphite pyrolytique et respectivement le filtre béryllium. Ces deux filtres utilisent un principe de fonctionnement basé sur une réflexion de Bragg des longueurs d'onde non-désirées. Le filtre en graphite va être transparent pour les neutrons ayant un vecteur d'onde $\mathbf{k}_f = 2.662 \text{ \AA}^{-1}$ alors que ceux d'ordre supérieurs seront réfléchis. Un autre vecteur d'onde utilisée est $\mathbf{k}_f = 1.97 \text{ \AA}^{-1}$. Le filtre béryllium va réfléchir tout neutron dont le vecteur d'onde est supérieur à 1.55 \AA^{-1} .

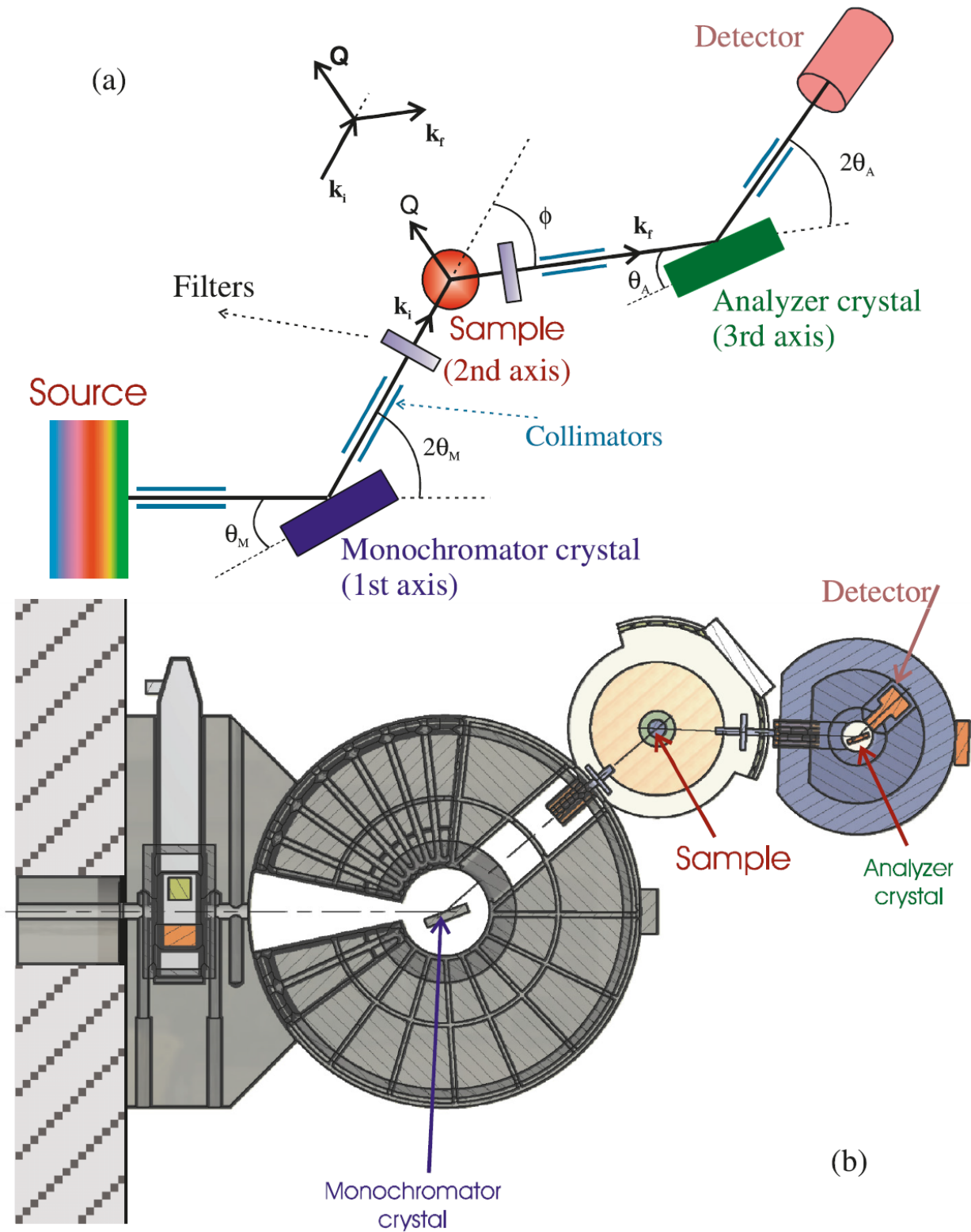


FIGURE 2.3 – (a) Schéma typique d'un spectromètre trois-axes (voir le texte pour des explications) (b) Schéma du spectromètre N5 appartenant au Canadian Neutron Beam Center. La figure est extraite de [Yamani 2010].

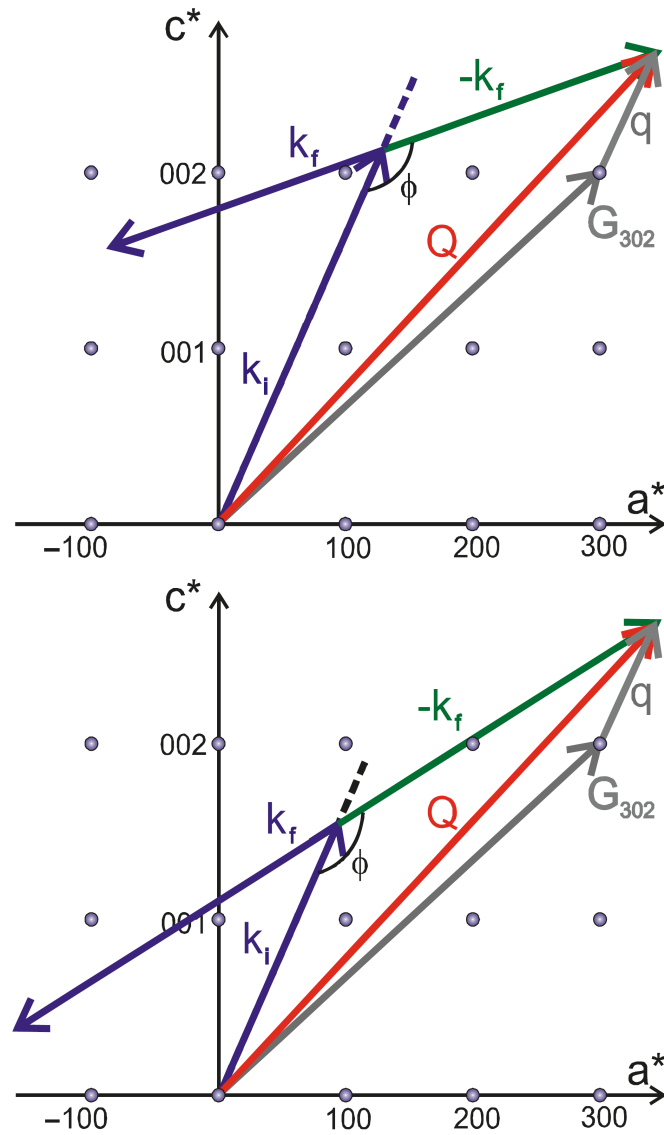


FIGURE 2.4 – Représentation de l'espace réciproque d'une diffusion inélastique dans un monocristal. La figure supérieure représente une diffusion avec perte d'énergie ($k_f < k_i$) alors que la figure inférieure montre un gain d'énergie ($k_f > k_i$). G_{hkl} est un vecteur de la structure cristalline dans l'espace réciproque et \mathbf{q} est le transfert de moment entre le point du réseau cristallin associée au vecteur G_{hkl} et le vecteur \mathbf{Q} . ϕ correspond à l'angle entre k_i et k_f . Extrait de [Yamani 2010].

Que mesure le détecteur ? On sait que $S(\mathbf{Q}, \omega)$ va dépendre directement de k_f et k_i . La mesure normalisée par un moniteur, un détecteur de très basse efficacité proportionnelle à $1/k_i$ placé avant l'échantillon permet de s'affranchir de la dépendance en $1/k_i$. Il n'y a donc pas de corrections supplémentaires pour les mesures effectuées à k_f constant, la configuration la plus courante. Lors d'une mesure à k_i fixé, on doit alors corriger l'intensité mesurée par un facteur $P(k_f)k_f^3 \cot \theta_a$ avec $P(k_f)$ la réflectivité de l'analyseur, θ_a est l'angle de diffusion de l'analyseur.

Au vu des deux méthodes, on devinera que la mesure à k_f fixe est la plus fréquente. Cependant dans certaines conditions (contraintes spatiales ou nécessité d'un signal sans harmonique), il peut être utile de travailler à k_i fixe. Si on considère que l'on a corrigé la dépendance en \mathbf{k}_i et \mathbf{k}_f (d'une des deux manières précédemment décrites) alors l'intensité mesurée par le détecteur d'un spectromètre trois-axes va correspondre à :

$$I(\mathbf{Q}, \omega) \approx \int R(\mathbf{Q} - \mathbf{Q}_0, \omega - \omega_0) S(\mathbf{Q}_0, \omega_0) d\mathbf{Q}_0 d\omega_0 \quad (2.16)$$

Avec $R(\mathbf{Q} - \mathbf{Q}_0, \omega - \omega_0)$ la résolution de l'instrument. Dans l'approximation de Cooper et Nathans [Cooper 1967] [Dorner 1972] [Chesser 1973], la résolution correspond à un ellipsoïde à 4 dimensions (E, Q_x, Q_y, Q_z). La résolution va être définie par l'angle de diffusion θ et les caractéristiques du monochromateur et de l'analyseur : leur angle de Bragg, la collimation (horizontale et verticale) du faisceau avant et après chaque élément, et la mosaïcité des monocristaux. On a donc un grand nombre de paramètres (7 paramètres pour chaque monocristal) mais qui peuvent être déterminés de manière précise. La mosaïcité de l'échantillon rentre également en compte et en pratique on peut l'inclure dans une fonction de diffusion effective $S'(\mathbf{Q}, \omega)$. La connaissance de la résolution est l'un des atouts du TAS cependant le calcul de la résolution est devenu plus complexe avec l'utilisation d'optiques focalisantes.

En effet, afin d'augmenter le flux, les monocristaux (monochromateur et analyseur) sont désormais composés de lames pouvant focaliser le faisceau de neutron aussi bien verticalement que horizontalement. Ces courbures complexifient le calcul de la résolution (principalement la courbure horizontale). La convolution du signal par la résolution peut donc sembler indispensable pour pouvoir analyser des résultats cependant son utilisation peut être très chronophage, aussi elle est souvent réalisée uniquement dans des situations précises :

- Quand le signal mesuré est physiquement très étroit en énergie ou en \mathbf{Q} , la largeur va alors être due à la résolution.
- Quand on veut étudier un signal composé de plusieurs pics très proches. Si la résolution est supérieur à la l'écart entre les pics, il sera alors impossible de les discriminer.
- Quand l'excitation que l'on mesure à une très forte dispersion. En effet, si le signal est dispersif, le signal convolué risque d'être fortement asymétrique et faussera la détermination de la largeur de l'excitation. On peut citer par exemple l'article de F. Bourdarot et *al.* [Bourdarot 2010] qui fait une convolution à une dimension pour l'étude d'une excitation inélastique asymétrique.

Dans les cas simples (la résolution est très inférieure à la largeur du signal) et pour k_f constant, on pourra considérer que le détecteur mesure :

$$I(\mathbf{Q}, \omega) \approx S(\mathbf{Q}, \omega) \quad (2.17)$$

2.4 Conclusion

Dans cette partie, nous avons donc présenté les deux techniques de mesure utilisées dans cette thèse. La chaleur spécifique a été un outil très utile pour caractériser les différents échantillons utilisés. Le coeur des expériences a cependant été la diffusion inélastique de neutrons avec un spectromètre trois-axes.

Le premier spectromètre trois-axes a été construit en 1956 et depuis ce spectromètre s'est révélé indispensable dans l'étude de la matière condensée de par sa grande versatilité et précision. Depuis 1956, les techniques de diffusion de neutrons se sont diversifiées avec l'apparition des techniques dites de "temps de vol". Cependant, l'utilité du spectromètre trois-axes n'a jamais été remise en question, grâce à ses nombreuses qualités. Dans ce chapitre, nous n'avons pas abordé les derniers développements qui ont été effectués sur le spectromètre trois-axes notamment grâce à l'utilisation de neutrons polarisés avec de nombreuses techniques de mesure qui

sont actuellement de plus en plus affinées. On peut notamment citer l'encodage par précession de Larmor [Martin 2011], MIEZE [Golub 2006] ou le spin-écho résonant appliqué à un TAS [Golub 1987]. Ces techniques permettront d'élargir le champ des possibilités de ce remarquable instrument.

Chapitre 3

Présentation de CeCoIn₅

3.1 Introduction

Découvert en 2001 par Petrovic et al. [Petrovic 2001], CeCoIn₅ est un composé qui en 10 ans a intéressé de multiples chercheurs et engendré de nombreuses expériences. Ainsi en 2011, on peut recenser plus de 159 publications relatives à CeCoIn₅ dont 65 publiées dans Physical Review Letters. CeCoIn₅ a suscité autant d'intérêt par ses multiples spécificités et plus particulièrement par sa physique extrêmement riche incluant de nombreuses problématiques des composés à électrons fortement corrélés : supraconductivité non-conventionnelle, possibilité d'être un supraconducteur multigaps, point critique quantique, ordre antiferromagnétique induit sous champ, résonance de spin, surface de Fermi bi-dimensionnelle. De multiples techniques de mesure ont été utilisées pour décrire la physique du composé aussi bien des mesures de chaleur spécifique ou de résistivité en conditions extrêmes, que des mesures de diffusion de neutron, d'ARPES, de RMN,...

Les études théoriques ont également été nombreuses notamment sur l'apparition de la phase induite sous champ dont nous reparlerons plus tard mais aussi sur le gap supraconducteur du composé, le point critique quantique ou le réseau de vortex. Ainsi ce composé est une grande opportunité pour la physique fondamentale dans sa quête de la compréhension des électrons fortement corrélés.

3.2 La famille des 1-1-5

CeCoIn₅ appartient à la "mine d'or", comme l'a nommé l'équipe de Los Alamos, qu'est la famille de composés dite "1-1-5" et plus particulièrement à la sous-famille CeMIn₅ avec M=Co,Rh,Ir. Tous ces composés cristallisent dans une structure tétragonale (voir Fig. 3.1 avec l'exemple de CeCoIn₅). Si on se focalise sur la structure de la famille CeMIn₅, on peut constater qu'il est possible de décrire la structure cristallographique comme composée de couches de CeIn₃ avec une couche intermédiaire de MIn₂. Cette structure quasi-bidimensionnelle est favorable à la supraconductivité et pourrait expliquer la haute valeur de T_c de CeCoIn₅ par rapport à CeIn₃ sous pression [Monthoux 2007]. Pour des détails sur la famille CeMIn₅, on peut citer l'article [Knebel 2011] qui présente en détails les derniers résultats obtenus sur ces composés.

Le premier composé étudié fut CeRhIn₅ [Hegger 2000] qui comme CeIn₃ [Mathur 1998] est antiferromagnétique à pression ambiante et devient supraconducteur avec l'application de pression. L'ordre antiferromagnétique de CeRhIn₅ est incommensurable et plus précisément hélicoïdal avec $q_{IC} = (\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, 0.297)$ [Knebel 2010]. Les diagrammes de phase de CeRhIn₅ et CeCoIn₅ sous pression sont présentés dans la Fig.3.1.

Le composé s'ordonne à $T_N = 3.8$ K et présente une T_c maximale de 2.1 K à la pression optimale de 2.5 GPa. On peut constater que T_N diminue avec l'application de la pression pour finalement disparaître à la pression critique p_c correspondant au point critique quantique. La supraconductivité, quant à elle, apparaît à proximité de ce point critique. Au contraire CeCoIn₅ est paramagnétique et supraconducteur à pression ambiante et montre une faible augmentation de la température critique avec l'application de la pression. S'il y a un point critique quantique en pression, il est supposé se trouver à pression négative si on considère le

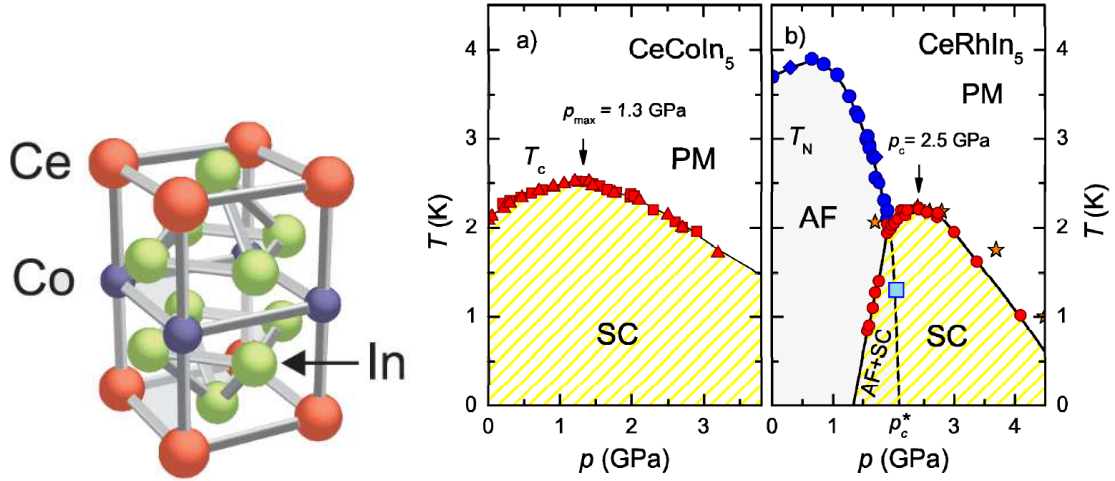


FIGURE 3.1 – **Figure de gauche** : Structure cristalllographique de CeCoIn_5 . **Figure de droite** : Diagramme de phase en pression et température de CeCoIn_5 et CeRhIn_5 extrait [Knebel 2010].

diagramme de phase de CeRhIn_5 . En comparant les deux diagrammes de phase, il paraît cohérent de considérer que celui de CeCoIn_5 ressemble à celui de CeRhIn_5 mais décalé en pression. Ce fait est à retenir ; en effet, lors de substitutions chimiques, on va induire une pression dite "chimique" liée à la différence de rayon atomique entre les atomes. Or une pression négative ferait peut-être basculer CeCoIn_5 d'un état supraconducteur à un état ordonné magnétiquement. Aussi pour toute substitution, il sera important d'évaluer la pression chimique induite. Nous reparlerons de cette remarque dans la partie sur les impuretés.

3.3 CeCoIn_5

CeCoIn_5 présente la température de supraconductivité la plus élevée parmi les composés à fermions lourd à base de Ce avec $T_c = 2.3$ K (à pression ambiante). La structure cristalline de CeCoIn_5 est de type $P4/mmm$ avec $a = 4.62$ Å et $c = 7.56$ Å. Dans la suite, nous allons développer les particularités de CeCoIn_5 : supraconductivité d -wave, proximité d'un point critique quantique, ordre antiferromagnétique induit sous champ et observation d'une résonance de spin par diffusion inélastique des neutrons.

3.3.1 Mesures thermodynamiques

Les premières mesures macroscopiques de chaleur spécifique réalisées par Petrovic et al [Petrovic 2001] indiquent un coefficient de Sommerfeld juste avant la transition de $\gamma \approx 290$ mJ.mol $^{-1}$.K $^{-2}$ comme indiqué sur la figure 3.2. Ce coefficient de Sommerfeld à température nulle avec application d'un champ $H > H_{c2}$ monte à environ 1 J.mol $^{-1}$.K $^{-2}$ et puisque $\gamma \sim m^*$, les électrons de conduction ont donc une grande masse effective.

Sur cette même figure est présentée la résistivité ρ . On peut constater que l'absence d'évolution en T^2 pour ρ avant la transition est la marque d'une forte déviation par rapport à un régime de liquide de Fermi. Le système est donc proche d'un point critique quantique. Cette proximité est confirmée par des substitutions (Néodyme sur le site du Cerium ou Cadmium sur le site de l'Indium,...) qui induisent avec de faibles taux l'apparition d'un ordre magnétique [Hu 2008] et [Nicklas 2007]. Il a également été observé l'existence d'un point critique quantique induit sous champ pour une valeur de H légèrement inférieure à H_{c2} (à pression ambiante) [Howald 2011].

Finalement, les mesures de susceptibilité magnétique ont révélé une anisotropie d'environ deux entre la susceptibilité dans le plan et celle suivant l'axe- c à basse température (voir Fig.3.2) [Petrovic 2001].

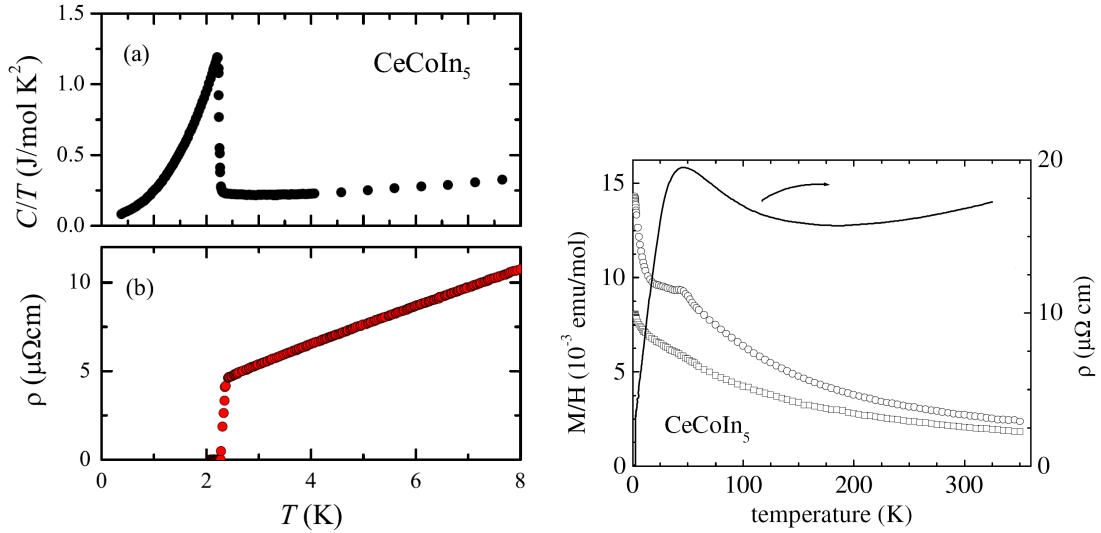


FIGURE 3.2 – **Figure de gauche :** (a) Chaleur spécifique divisée par la température de CeCoIn₅. (b) Dépendance en température de la résistivité de CeCoIn₅. Au dessus de la transition supraconductrice, on constate que la résistivité évolue de manière linéaire jusqu'à $T \approx 10$ K. **Figure de droite :** Susceptibilité magnétique mesurée suivant l'axe- c (points circulaires) ou dans le plan (points carrés). La courbe noire correspond à la résistivité. Extrait de [Petrovic 2001].

3.3.2 Mesure de la surface de Fermi et gap supraconducteur

La structure électronique de CeCoIn₅ présente un caractère bi-dimensionnel avec l'existence d'une surface de Fermi cylindrique [Maehira 2003] comme le montre la figure 3.3. On peut cependant noter que la structure n'est pas totalement 2D et qu'il existe des bandes de forme tridimensionnelle. Les calculs théoriques ont été confirmés par des mesures d'ARPES [Koitzsch 2009] et d'oscillations quantiques [McCollam 2005].

Le gap SC de CeCoIn₅ est non-conventionnel de type $d_{x^2-y^2}$. Des mesures de conductivité thermique (présentées sur la Fig. 3.4) couplées à des mesures résolues en angle de chaleur spécifique sous champ ont permis de mettre en évidence l'existence d'un axe d'ordre 4 dans le plan qui ont permis de conclure sur la nature du gap. Un autre indice est l'existence d'une résonance de spin dont nous reparlons plus loin. De plus, il est suspecté que la supraconductivité dans CeCoIn₅ pourrait être multigap [Seyfarth 2008].

3.4 Mesures neutroniques

3.4.1 Diffusion élastique de neutrons : la phase LTHF

Les mesures thermodynamiques ont mis en évidence l'existence dans CeCoIn₅ d'une phase à fort champ et basse température (voir Fig. 3.5) étroitement liée à la supraconductivité puisqu'elle disparaît à H_{c2} [Watanabe 2004] [Kakuyanagi 2005]. Autre particularité, la transition supraconducteur-normale devient du 1er ordre [Bianchi 2002] aux alentours de cette phase. Cette phase appelée LTHF pour *Low Temperature and High Field* est soupçonnée d'être la réalisation possible d'une phase FFLO [Bianchi 2003] [Martin 2005]. Le diagramme de phase en fonction de la température et du champ magnétique est présenté sur la figure 3.5. Les limites de H_{c2} sont, dans les deux directions, déterminées par la limite de Pauli.

On pourra observer sur la figure 3.5 que la phase LTHF n'apparaît que pour le champ appliqué dans le plan basal. Un angle de plus de 20° en dehors du plan suffit à détruire la phase (observé par des mesures de diffusion de neutrons [Blackburn 2010] et thermodynamiques [Correa 2007]). On peut aussi noter l'existence d'un régime de Fermi au delà de H_{c2} à basse température.

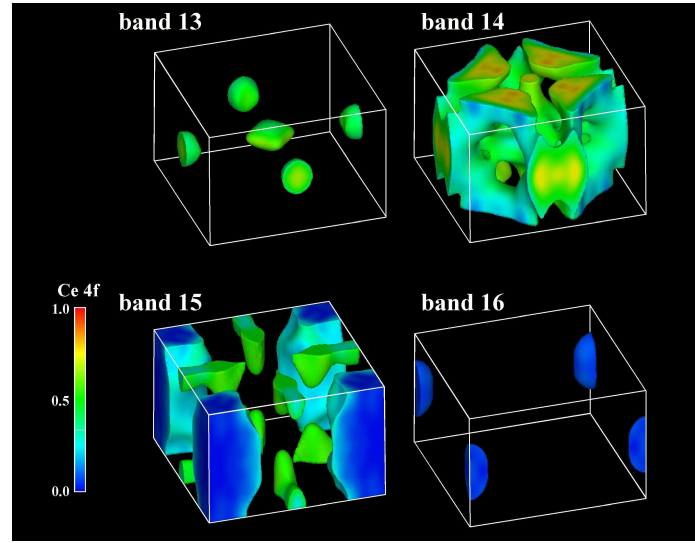


FIGURE 3.3 – Surface de Fermi obtenue par simulation à partir de calcul de structure de bandes. Extrait de [Maehira 2003].

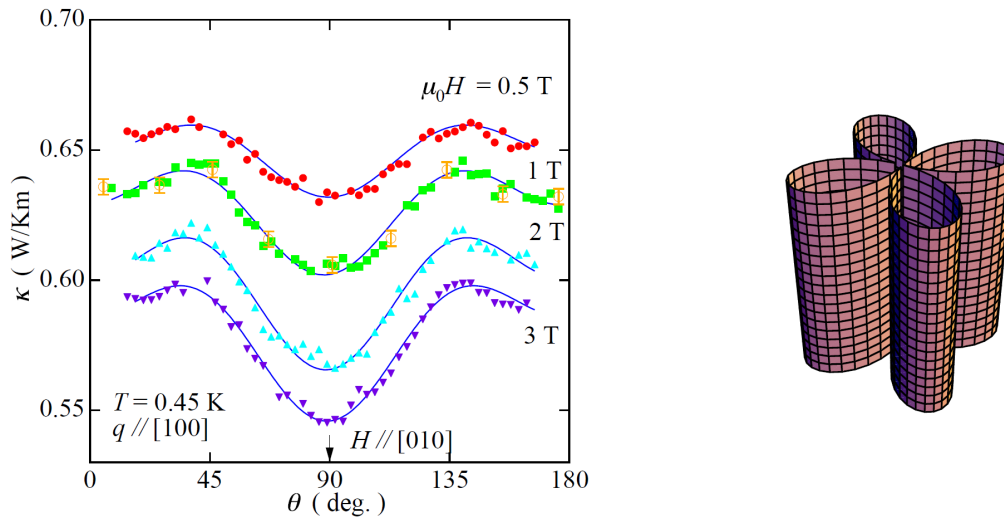


FIGURE 3.4 – **Figure de gauche** : Dépendance angulaire de la conductivité thermique à $T = 0.45$ K indiquant l'existence d'un axe de symétrie 4 dans le composé. Extrait de [Izawa 2001] **Figure de droite** : Représentation graphique d'un gap de type $d_{x^2-y^2}$.

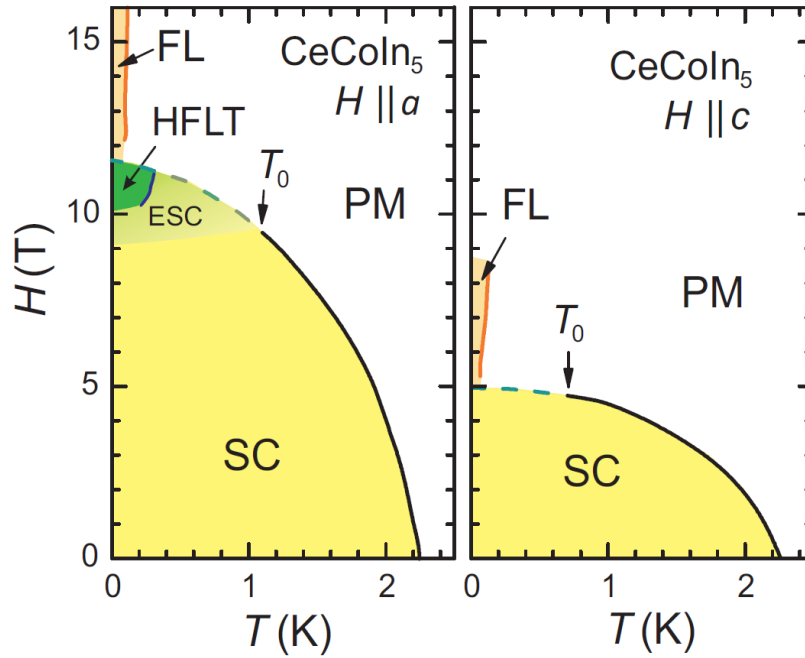


FIGURE 3.5 – Diagramme de phase (H, T) de CeCoIn_5 avec sur la **figure de gauche** : $H \parallel a$ et sur la **figure de droite** : $H \parallel c$. On peut noter pour la figure de gauche, l'existence d'une phase qui apparait sous champ appelé ici HFLT (High Field Low Temperature), et dans le texte LTHF. ESC (Exotic Superconducting Crossover) correspond à un régime où la RMN observe déjà de fortes fluctuations magnétiques sans que l'ordre incommensurable se soit encore établi. Extrait de [Knebel 2010].

Phase FFLO

En 1964, dans deux publications indépendantes, Peter Fulde et Richard A. Ferrel [Fulde 1964] d'un côté et Anatoly Larkin et Yuri Ovchinnikov [Larkin 1965] (l'article écrit en russe fut publié en 1964 mais la version anglaise parue en 1965) prédisent théoriquement l'existence d'une phase supraconductrice inhomogène à basse température et à haut champ.

Si un supraconducteur, dont l'état fondamental constitué de paires de Cooper singulet avec une quantité de mouvement nulle, est soumis à un champ magnétique alors la paire de Cooper va être détruite par deux effets du champ :

- L'effet orbital correspond à la force de Lorentz exercée sur les paires de Cooper (qui ont un vecteur d'onde opposé)
- l'effet paramagnétique (qui est responsable de la limite de Pauli) correspond à l'effet Zeeman sur une paire de Cooper.

Maintenant si on ne considère que l'effet paramagnétique alors l'effet du champ magnétique sur la phase supraconductrice va être de séparer les spins up et down, entraînant l'existence de deux surfaces de Fermi relatives à chacun des types de spin. Les paires de Cooper vont être formées à partir d'électrons appartenant à chacune des surfaces. Ainsi la paire de Cooper aura alors une quantité de mouvement non-nulle correspondant à la différence d'énergie entre les surfaces de Fermi ; c'est la phase FFLO. Cette quantité de mouvement non-nulle dépendante du champ magnétique a pour conséquence une modulation spatiale du paramètre d'ordre (avec un vecteur \mathbf{q} d'ordre).

Pour réaliser cet état, il faut que le champ critique H_{c2} du supraconducteur soit déterminé par la limite de Pauli et en limite propre (c'est-à-dire que le libre parcours moyen des quasiparticules soit supérieur à la longueur de cohérence de la supraconductivité). Or peu de supraconducteurs présentent ces caractéristiques. En effet, dans les supraconducteurs conventionnels (en limite propre), la limite de Pauli ne dépend que de T_c et la limite orbitale est fixée par la masse des quasiparticules souvent faible, aussi H_{c2} est contrôlé par cette

dernière. Cependant dans les fermions lourds, on est dans le cas inverse avec une grande masse effective et une faible valeur de T_c . Ainsi la limite de Pauli peut être dominante. L'existence d'une phase FFLO va donc dépendre de la compétition entre ces deux effets. Pour finir cette courte présentation de la phase FFLO, il est important de préciser qu'aucune phase de ce type n'a pour le moment été identifiée de manière certaine dans un composé.

LTHF : phase FFLO ou état exotique ?

Puisque CeCoIn₅ est un supraconducteur "Pauli" [Bianchi 2008] et que le libre parcours moyen des quasiparticules est $l \approx 14\xi_0$ [Movshovich 2001], l'existence d'une phase sous champ a aussi été considérée comme une possible réalisation de la phase FFLO. Les premières mesures furent accomplies par des expériences de RMN qui penchent aussi bien vers une possible réalisation de la phase FFLO [Koutroulakis 2008] [Koutroulakis 2010] ou au contraire la mettent en doute [Young 2007]. Mais les résultats les plus novateurs sur le sujet furent apportées par des mesures de diffusion élastique de neutrons réalisées par Kenzelmann *et al.* en deux expériences [Kenzelmann 2008] et [Kenzelmann 2010].

Lors d'une première expérience [Kenzelmann 2008], le champ a été appliqué dans le plan basal suivant la direction $[1,1,0]$ et il a été observé un ordre magnétique incommensurable. Les pics élastiques sont aussi bien mesurée en $Q=(1-q,1-q,\frac{1}{2})$ qu'en $Q=(q,q,\frac{1}{2})$ avec $q = 0.44$ (voir Fig.3.6). La largeur du pic de structure magnétique est limitée par la résolution de l'instrument. Ainsi l'ordre magnétique a une longueur de cohérence ≥ 60 nm, c'est-à-dire supérieure à la taille des vortex (≈ 10 nm [Curro 2001]), indiquant que l'ordre magnétique n'est pas restreint aux vortex.

L'ordre magnétique est décrit comme une onde de densité de spin, modulée en amplitude avec un moment suivant c de valeur $m=0.15 \mu_B$ (à $T=60$ mK et $H = 11$ T) (voir 3.7). Le pic élastique disparaît à H_{c2} et à T_c et apparait dans la phase supraconductrice pour une température de 60 mK à $H = 10.5$ T (voir Fig.3.6). Le vecteur d'ordre q ne varie pas avec le champ magnétique (voir Fig.3.6). Cette absence d'évolution en fonction du champ magnétique semble être en contradiction avec la théorie d'une phase FFLO. En effet, on peut s'attendre à ce que l'ordre magnétique associé à FFLO suive la même dépendance en champ que la quantité de mouvement des paires de Cooper [Fulde 1964] [Larkin 1965].

La seconde expérience [Kenzelmann 2010] a été faite en appliquant le champ suivant l'axe $[1,0,0]$. Il a été constaté que le paramètre d'ordre ne change pas malgré le changement de direction du champ magnétique. Ce résultat suggère que le magnétisme de la phase LTHF n'est pas dépendant du champ magnétique mais va être lié à la symétrie du gap supraconducteur, dans ce cas, $d_{x^2-y^2}$.

L'absence d'évolution du vecteur q de l'ordre aussi bien avec la valeur qu'avec l'orientation du champ magnétique constatée par Kenzelmann *et al.* semble donc être en contradiction avec une réalisation d'une phase FFLO. Cependant la mesure de l'évolution d'un paramètre d'ordre magnétique est une manière indirecte de sonder la phase FFLO et il est donc délicat de conclure de manière certaine sur ce sujet.

Théories sur la phase LTHF

La phase LTHF a été le sujet de nombreuses théories qui ont tenté d'établir sa nature. Car si le paramètre d'ordre est connu, la raison de l'apparition de cet ordre magnétique est encore mal comprise. Soupçonné au départ d'être une phase FFLO, les mesures de RMN et de neutrons ont ouvert la porte à de multiples théories :

- La phase LTHF serait la conséquence de l'apparition d'une phase FFLO qui entraînerait la formation d'état lié de Andreev près des zéros du paramètre d'ordre FFLO. Ainsi l'onde de densité de spin serait une conséquence indirecte d'une phase FFLO [Yanase 2009].
- La phase serait liée à la coexistence de plusieurs types de condensats en compétition : un état d-wave singulet, un état triplet et une onde de densité de spin. [Aperis 2010]
- Un ordre lié à la condensation de la résonance [Michal 2011b] [Michal 2011a] dont nous reparlerons dans le chapitre sur l'étude de la résonance en fonction du champ
- La mise en ordre est uniquement due à la forte limite de Pauli et à la structure nodale du gap qui aboutirait à la formation d'une onde de densité de spin [Kato 2011]

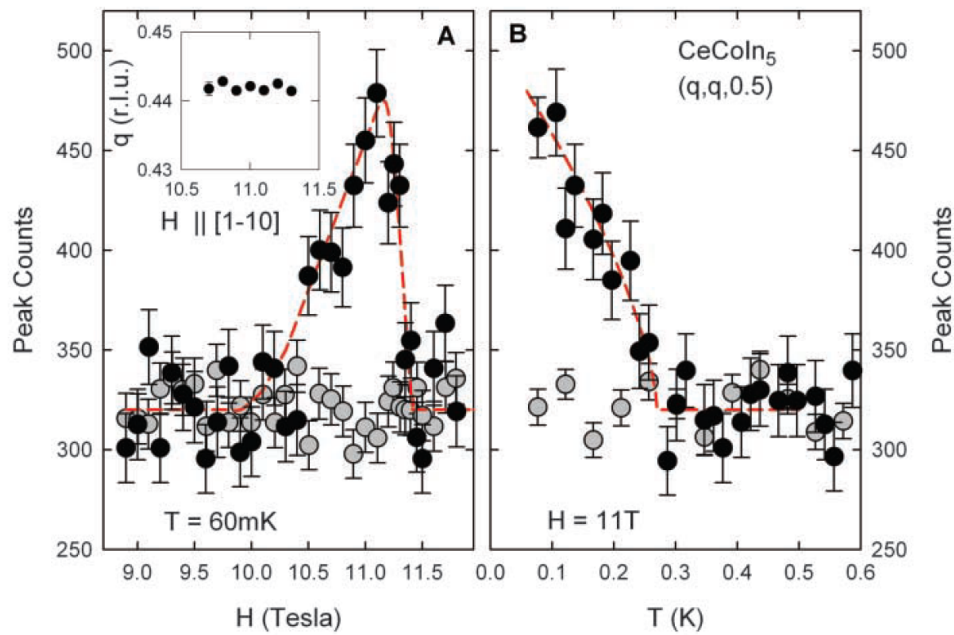


FIGURE 3.6 – Intensité du signal élastique mesuré en $(q,q,0.5)$ (A) en fonction du champ magnétique appliqué à une température de 60 mK (B) en fonction de la température avec $H = 11 \text{ T}$. Les cercles gris représentent le bruit de fond. La ligne pointillé dans la figure (A) est un guide pour les yeux alors que celle de la figure (B) décrit le bruit de fond et l'apparition de l'ordre magnétique avec une transition du second ordre avec $\beta = 0.365$ l'exposant critique associé. L'insert de la figure (A) montre l'évolution du vecteur d'ordre magnétique q suivant le champ magnétique appliqué. Extrait de [Kenzelmann 2008]

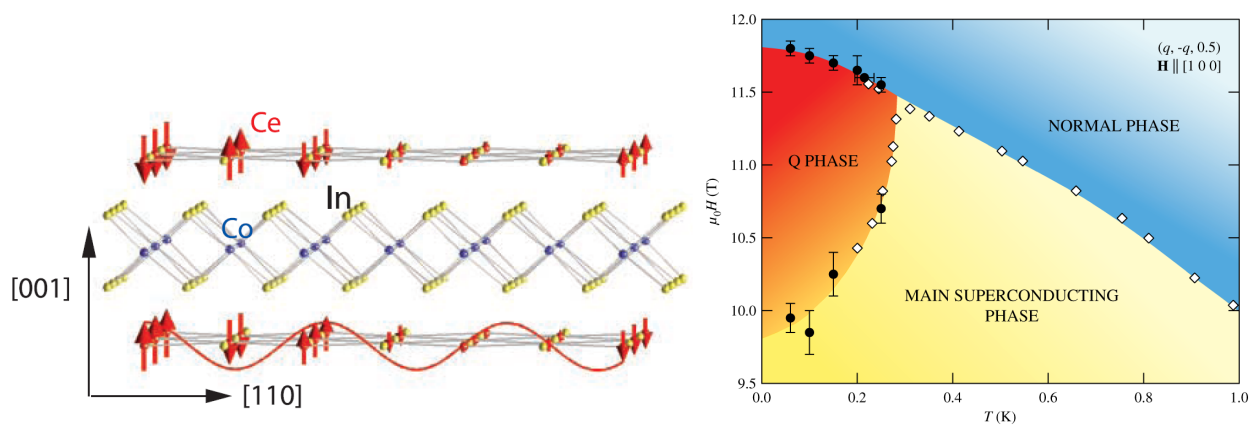


FIGURE 3.7 – **Figure de gauche :** Représentation de l'ordre magnétique modulé dans CeCoIn_5 de la phase LTHF à $T = 60 \text{ mK}$ et $H = 11 \text{ T}$. Extrait de [Kenzelmann 2008] **Figure de droite :** Diagramme de phase (H, T) indiquant les limites de la phase LTHF (appelée ici Q-phase). Les points noirs correspondent aux mesures de neutrons et les points blancs aux mesures thermodynamiques. Extrait de [Kenzelmann 2010].

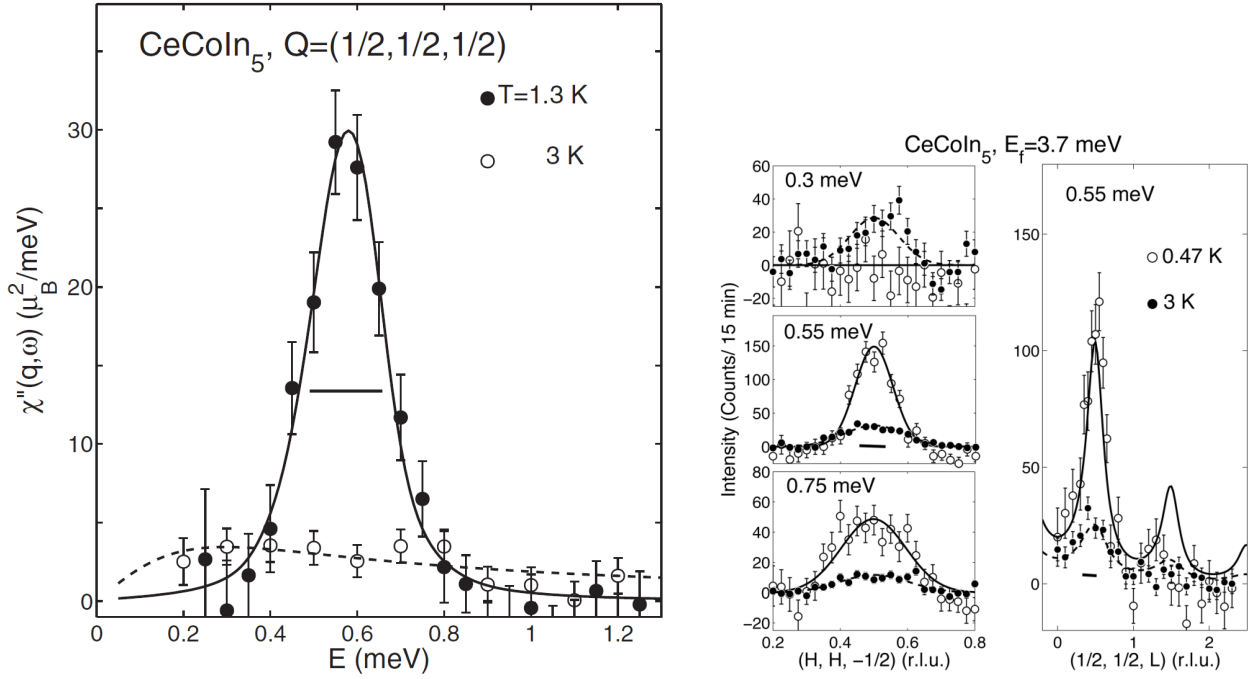


FIGURE 3.8 – **Figure de gauche** : Partie imaginaire de la susceptibilité dynamique à $Q=(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ dans l'état normal (3 K) et l'état supraconducteur (1.35 K). La barre horizontale correspond à la résolution. Extrait de [Stock 2008] **Figure de droite** : Spectres à énergie constante suivant les directions $(HH\frac{1}{2})$ et $(\frac{1}{2}\frac{1}{2}L)$ dans l'état normal et supraconducteur. Les barres horizontales indiquent la résolution. Extrait de [Stock 2008].

Comme on peut le constater, il existe de multiples possibilités pour expliquer l'existence de cette phase et on peut s'attendre à ce que les mesures expérimentales apportent des éléments déterminants dans les prochaines années.

3.4.2 Diffusion inélastique de neutrons : la Résonance de spin

En 2008, des mesures de diffusion inélastique de neutrons réalisée par C. Stock *et al.* [Stock 2008] ont mis en évidence un signal quasi-élastique de largeur $\Gamma = 0.3 \pm 0.15$ meV dans l'état normal. Par contre, dans l'état supraconducteur, le spectre magnétique présente un pic très intense à une énergie de 0.6 ± 0.03 meV avec une largeur inférieure à 0.07 meV (voir figure 3.8). Par analogie avec ce qui a déjà été observé dans les autres supraconducteurs non-conventionnels, cette excitation a été appelée résonance de spin.

Le signal magnétique aussi bien dans l'état normal que dans l'état supraconducteur reste centré autour de $Q=(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ qui correspond au vecteur d'ordre magnétique du composé CeIn₃ [Knafo 2003]. Les longueurs de corrélations déterminées par Stock *et al.* sont $\xi_a = 9.6 \pm 1.0$ Å $\xi_c = 6.5 \pm 0.9$ Å pour une énergie de 0.55 meV. Contrairement à la surface de Fermi qui a un caractère bi-dimensionnel bien marqué, les longueurs de corrélation de la résonance sont quasiment isotropiques avec un ratio de $\frac{\xi_a}{\xi_c} = 1.5 \pm 0.4$. La dynamique de spin semble donc avoir un caractère 3D plus fort.

Les mesures réalisées en augmentant la température dans l'état supraconducteur mettent en évidence l'élargissement du pic de résonance en énergie avec une forte baisse de son énergie caractéristique. Cela correspond à une baisse de la durée de vie de la résonance due à la fermeture du gap SC.

Dans le cadre du modèle de l'exciton de spin, la découverte de la résonance dans CeCoIn₅ a renforcé l'idée qu'il s'agissait d'un supraconducteur de gap $d_{x^2-y^2}$ vu qu'il est nécessaire d'avoir un changement de signe du gap pour obtenir une résonance.

3.5 Conclusion

Pour conclure, la "mine d'or" découverte par l'équipe de Los Alamos s'est révélée riche en filons et la famille CeMIn₅ est l'un des plus prolifiques. Les composés de la famille 1-1-5 présentent des particularités exceptionnelles et ont permis de réaliser de très belles expériences et d'approfondir les connaissances sur de nombreux sujets : parmi les plus évidents, les résonances de spin dont cette thèse est le sujet et la phase LTHF. La veine est loin d'être épuisée et on peut espérer que les études sur ce composé riche et exotique qu'est CeCoIn₅ continueront afin de pouvoir expliquer la physique de ce système.

Nous allons par la suite nous focaliser sur l'étude de la résonance. En effet CeCoIn₅ se montre un parfait "terrain d'essai" à la fois proche des cuprates par sa structure plutôt bidimensionnelle, sa surface de Fermi composé de cylindres et son gap supraconducteur $d_{x^2-y^2}$. Mais de plus, la faible échelle d'énergie du composé ($\Omega_{res}=0.55$ meV pour CeCoIn₅ à comparer à $\Omega_{res}=41$ meV YBa₂Cu₃O_{6+x}) rend beaucoup plus facile l'étude de la résonance en fonction de perturbations extérieures comme le champ magnétique. En effet, pour CeCoIn₅, un champ de 12 T suffit à détruire la supraconductivité alors dans YBa₂Cu₃O_{6+x} il est estimé à plus de 100 T. Bien sûr, la faible énergie de la résonance complique également les mesures de diffusion de neutrons qui doit tenir compte du bruit de fond incohérent à basse énergie, problème inexistant dans les cuprates qui doivent quant à eux gérer les perturbations causées par les phonons.

Un autre avantage de CeCoIn₅ est la facilité pour réaliser des substitutions dans le matériau. Sa découverte est déjà due à la substitution du Rhodium par le Cobalt. Et on peut réaliser de multiples autres substitutions aussi bien sur le site du Cérium (La, Nd, Yb, Y...), du Cobalt (Rh, Ir) que de l'Indium (Sn, Hg, ...). Ainsi il est possible d'étudier de manière précise l'évolution de la résonance en fonction de différentes substitutions.

Chapitre 4

Effets des impuretés sur la résonance de spin

Dans ce chapitre, nous allons présenter les résultats obtenus sur l'évolution de la résonance de spin avec l'introduction d'impuretés non-magnétiques avec une substitution du Cérium par le Lanthane et magnétiques avec une substitution par le Néodyme. Dans un premier temps, nous présenterons les données des mesures de chaleur spécifique puis dans la deuxième partie nous nous focaliserons sur les données de diffusion inélastique de neutrons obtenues sur les spectromètres IN12 et IN14 à l'ILL et 4F1 et 4F2 au LLB. Les résultats obtenus seront mis en relief dans la discussion avec les spectres inélastiques du cuprate $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ ainsi que de récents calculs effectués sur les supraconducteurs au Fer.

4.1 Effet des impuretés sur la supraconductivité

L'effet des impuretés dans les supraconducteurs est un sujet vaste et passionnant mais nous allons nous limiter à une brève introduction sur les effets des impuretés non-magnétiques et magnétiques sur le gap supraconducteur selon qu'il est *s*-wave ou *d*-wave. Pour plus de détails, nous recommandons la très complète revue de Balatsky qui décrit en détails les effets d'impuretés [Balatsky 2006].

L'introduction d'impuretés non-magnétiques dans un composé supraconducteur a des effets très différents en fonction du type du supraconducteur et de la nature des impuretés. Il a été observé expérimentalement que les supraconducteurs de type *s* étaient particulièrement résistants à l'effet des impuretés. La première étude théorique sur les effets des impuretés a été faite par Anderson [Anderson 1959]. Il établit ce qui est couramment appelé maintenant le théorème d'Anderson. Ce théorème repose sur le fait que les impuretés non-magnétiques ne brisent pas le renversement du temps et donc qu'un électron diffusé par l'impureté pourra toujours former une paire de Cooper avec un autre électron. Ce résultat n'est valide que pour un gap supraconducteur de type *s* (i.e un gap uniforme autour de la surface de Fermi).

Cependant dans le cas d'un supraconducteur de type *d*-wave, l'effet des impuretés est bien plus visible. En effet, à cause de la non-uniformité du gap supraconducteur autour de la surface de Fermi, il n'est plus possible pour un électron diffusé de trouver un autre électron inversé par rapport au temps. Ainsi les impuretés non-magnétiques vont "briser" les paires de Coopers et donc aboutir à un abaissement de T_c et du gap supraconducteur (voir Fig. 4.1). Cet effet est également présent dans un supraconducteur de type *s*-wave avec des impuretés magnétiques qui vont entraîner un renversement du spin lors de la diffusion. Dans le cas d'un *d*-wave, les impuretés magnétiques n'auront globalement pas un effet plus destructeur sur la supraconductivité que les impuretés non-magnétiques.

4.2 Préparation des échantillons

Les monocristaux utilisés pour l'expérience ont été obtenus par la méthode dite de croissance par flux au CEA-Grenoble en collaboration avec G. Lapertot et K. Mony. Elle consiste à mettre les composants atomiques en proportions stoechiométrique à l'exception d'un des éléments qui sera en excès. Ainsi le mélange utilisé

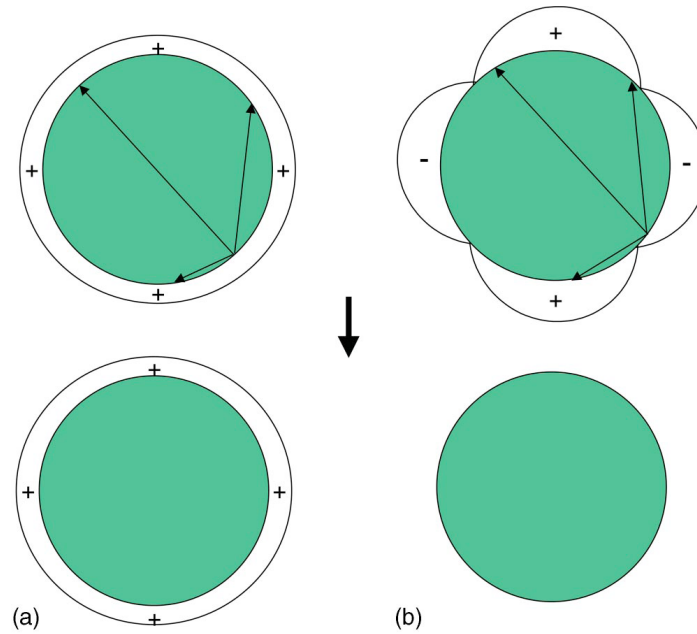


FIGURE 4.1 – Schémas représentant l’effet de la diffusion élastique sur deux types de gap supraconducteur : (a) gap isotopique de type *s*-wave (b) gap anisotropique de type *d*-wave. La figure du haut montre la dépendance en \mathbf{k} du gap supraconducteur autour de la surface de Fermi (en vert) ainsi que les différents types de diffusion élastique pouvant avoir lieu. La figure du bas présente les effets de ces diffusions : dans le cas (a) la supraconductivité n’est pas affecté, dans le cas (b) les diffusions réduisent la valeur moyenne du gap à zéro, détruisant la supraconductivité. Extrait de [Mackenzie 2003].

correspond dans notre cas à $1-x/x/1/20$, c’est-à-dire que pour avoir une concentration voulue de x unités de Lanthane, on met $(1-x)$ unités de Cérium, 1 unité de Cobalt et 20 unités d’indium qui servira de flux.

Les matériaux sont mis dans une ampoule en quartz portée à très haute température dans un four puis subissent une redescende en température très lente pour laisser les cristaux croître. Au bout d’une certaine durée (généralement de l’ordre de la semaine), les capsules sont centrifugées afin d’éliminer l’indium. L’étape de centrifugation n’élimine pas entièrement l’indium. Aussi est-il nécessaire de procéder à des attaques acido-basique afin de séparer les monocristaux de la gangue restante d’indium. En effet, l’indium en surplus ne se solidifie pas dans une structure cristalline, il est donc beaucoup plus sensible que les cristaux de CeCoIn_5 à une attaque acide. Les plaquettes récupérées sont de faible volume avec des hauteurs de l’ordre de la centaine de micromètres et des longueurs et des largeurs de l’ordre de plusieurs millimètres. Cette croissance dans le plan basal des monocristaux est courante avec cette méthode. Les cristaux ont ensuite été mesurés par chaleur spécifique pour évaluer leur température critique et vérifier la concentration en comparant avec les mesures réalisées par d’autres équipes [Petrovic 2002] et [Tanatar 2005]. L’avantage de cette méthode est qu’elle est simple dans le principe et la mise en oeuvre et aboutit à des cristaux de très bonne qualité. Par contre, il existe plusieurs défauts :

- il est arrivé dans plusieurs cas que le taux de substitution dans les monocristaux ne suivaient le taux initialement mis dans le mélange, par exemple dans $\text{CeIn}_{3-x}\text{Sn}_x$
- Un autre défaut est la petite taille des cristaux obtenus. Pour de plus grands volumes, il convient d’utiliser d’autres méthodes de croissance (par exemple, la méthode de Czochralski).

Concernant les substitutions pour le Nd ou le La dans CeCoIn_5 , les mesures réalisées confirment que la concentration finale d’impuretés correspond à la concentration initiale mise dans les ampoules.

La méthode de croissance cristalline décrite ici est la même que celle utilisée pour les cristaux de CeCoIn_5 purs servant aux expériences du chapitre 5.

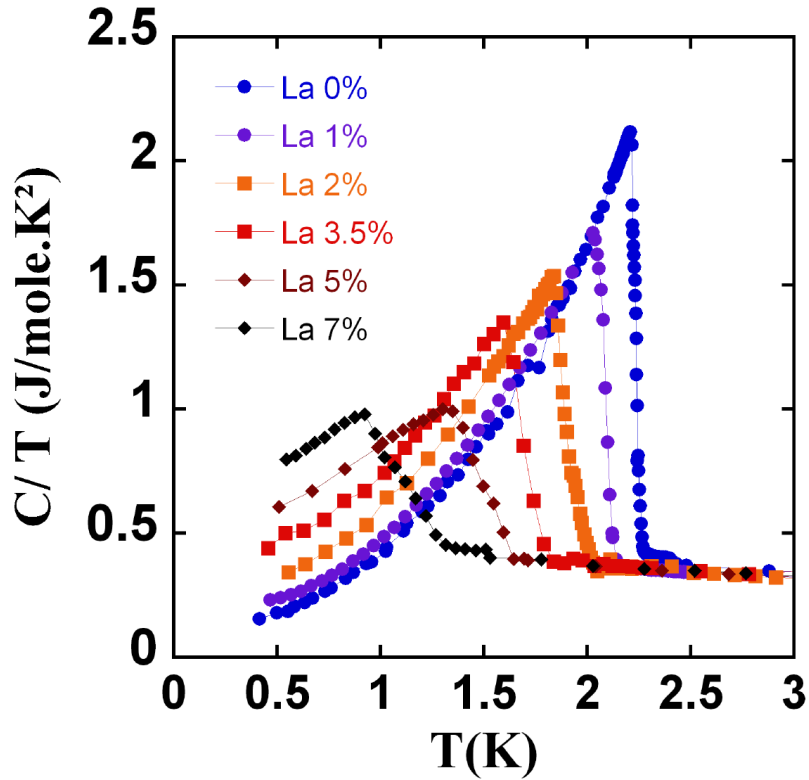


FIGURE 4.2 – Chaleur spécifique divisée par la température (C/T) en fonction de la température et de la substitution lanthane.

4.3 Étude des mesures de chaleur spécifique sur le composé $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{CoIn}_5$ et $\text{Ce}_{1-x}\text{Nd}_x\text{CoIn}_5$

4.3.1 Chaleur spécifique avec une substitution La

Une étude en chaleur spécifique a été menée sur les composés avec une substitution au Lanthane. Les mesures ont été effectuées en utilisant un appareil commercial de type PPMS et sont présentées sur la figure 4.2. Sur cette figure est représentée l'évolution de chaleur spécifique divisée par la température en fonction de la température.

- On observe tout d'abord un fort saut de chaleur spécifique à la transition supraconductrice. Ce saut de chaleur spécifique est relié à T_c et à γ ($T > T_c$) dans la théorie BCS [Tinkham 1996] par la relation $\frac{\Delta C}{\gamma T} = 1.43$. Or pour le cas particulier de CeCoIn_5 , le rapport est de 4.5, signe d'un couplage extrêmement fort [Petrovic 2002].
- Ensuite on constate que la température critique diminue avec l'augmentation de la substitution avec un taux de suppression de $-0.077T_c/(1\% \text{ de substitution de La})$ présenté sur la Fig.4.3. Les mesures de résistivité effectuées par Petrovic *et al.* aboutissent à une pente de $-0.056T_c/(1\% \text{ de substitution de La})$ [Petrovic 2002]. Cette différence peut être expliquée par les différences de méthodes expérimentales puisque les mesures de chaleur spécifique sondent plus en profondeur le composé que la résistivité.
- Une autre observation est l'augmentation du coefficient de Sommerfeld γ_0 linéaire avec le pourcentage de substitution montré sur la Fig.4.3. Ce résultat est en accord avec les travaux sur les impuretés non-magnétiques dans un supraconducteur non-conventionnel [Sun 1995]. Cette augmentation linéaire est la marque d'un effet d'impuretés qui vont briser les paires de Cooper.
- On constate également que la transition s'élargit avec l'augmentation de la substitution. Cette augmentation pourrait être liée à une distribution croissant de T_c due à de l'inhomogénéité.

L'évolution des différents paramètres est présentée dans le tableau ci-dessous 4.1.

TABLE 4.1 – Tableau présentant les résultats des mesures de chaleur spécifique. T_c a été déterminé en prenant la température à mi-hauteur de la transition. γ_0 a été obtenu par extrapolation à partir des points à basses températures et le saut de chaleur spécifique ΔC a été obtenu par la différence entre le sommet de chaque transition et la valeur de chaleur spécifique pré-transition.

La-substitution	T_c (K)	γ_0 (J/mole.K ²)	ΔC (J/mole.K ²)
0%	2.3 ± 0.02	0.01 ± 0.015	1.77
1%	2.1 ± 0.03	0.137 ± 0.025	1.36
2%	1.9 ± 0.073	0.21 ± 0.006	1.19
3%	1.78 ± 0.09	0.24 ± 0.005	1.06
3.5%	1.68 ± 0.09	0.30 ± 0.01	1.00
4%	1.52 ± 0.11	0.49 ± 0.01	0.79
5%	1.50 ± 0.12	0.55 ± 0.02	0.66
7%	1.1 ± 0.16	0.70 ± 0.01	0.63

En dernière remarque sur les mesures de chaleur spécifique, on peut aborder la pression chimique engendrée par la substitution La. En effet, l'introduction de La dans le composé va entraîner une augmentation du volume de la maille, puisque le rayon atomique du La est supérieur à celui du Ce. La pression chimique négative pour une substitution de 5% de La va être de 1.1 kbars. Or avec une pression négative, la température critique dans CeCoIn₅ va diminuer comme il a été présenté dans l'introduction sur le composé. Le taux de suppression de la supraconductivité est estimé à 0.1K / kbar si on considère la pente obtenue par les mesures sous pression [Knebel 2010]. Ainsi pour une substitution de 5%, si la pression négative était le seul effet oblitérateur, on aurait $T_c = 2.2$ K à comparer avec la valeur de $T_c = 1.5$ K obtenue.

Cette différence indique que la pression chimique n'a pas un rôle central dans la diminution de la température critique et que l'effet principal est bien le "pair-breaking" engendré par les impuretés non-magnétiques.

4.3.2 Chaleur spécifique avec une substitution Nd

Une étude en chaleur spécifique a été menée sur les composés avec une substitution Néodyme. Les mesures ont été effectuées en suivant le même protocole que celui utilisé dans la partie précédente sur des monocristaux de Ce_{1-x}Nd_xCoIn₅ et sont présentées sur la figure 4.4. Sur cette figure est représentée l'évolution de la chaleur spécifique divisée par la température en fonction de la température.

La première chose que l'on peut remarquer est la présence de deux transitions. En effet, la substitution du néodyme entraîne l'apparition d'un ordre magnétique qui apparaît à une température T_m inférieure à T_c . L'évolution de ces deux températures en fonction de la substitution est opposée : T_m va augmenter alors que T_c diminue. La diminution de la température critique en fonction du taux de substitution est tracée sur la figure 4.5. A titre de comparaison est tracée l'évolution de T_c pour une substitution La.

On peut constater que l'évolution de la température critique est comparables pour les deux types d'impuretés. Le Nd supprime la supraconductivité au taux de $-0.043T_c/[1\% \text{ de Nd}]$ alors que le taux du La est $-0.077T_c/[1\% \text{ de La}]$. Ce résultat est en contradiction avec ce qui est observé dans les supraconducteurs conventionnels où les impuretés magnétiques ont un effet très fort sur la supraconductivité. Cependant dans le cas des supraconducteurs non-conventionnels, la différence est plus modérée [Bulut 2000] et l'on retrouve ce comportement dans nos mesures. En ce qui concerne CeCoIn₅, des études détaillées de résistivité pour différentes impuretés magnétiques et non-magnétiques ont montré que les effets indépendants du spin de l'impureté sont dominants [Paglione 2007].

La température critique d'une composition précise a été mesurée sur plusieurs cristaux afin de s'assurer de l'homogénéité d'un groupe de cristaux. Les mesures de chaleur spécifique centrées sur la transition sont montrées sur la figure 4.6. On peut constater que la température de début de transition est la même pour tous les cristaux. Cependant la distribution de T_c varie légèrement entre chaque cristal.

Concernant l'évolution du saut de chaleur spécifique ΔC , on peut constater que l'on a comme pour le

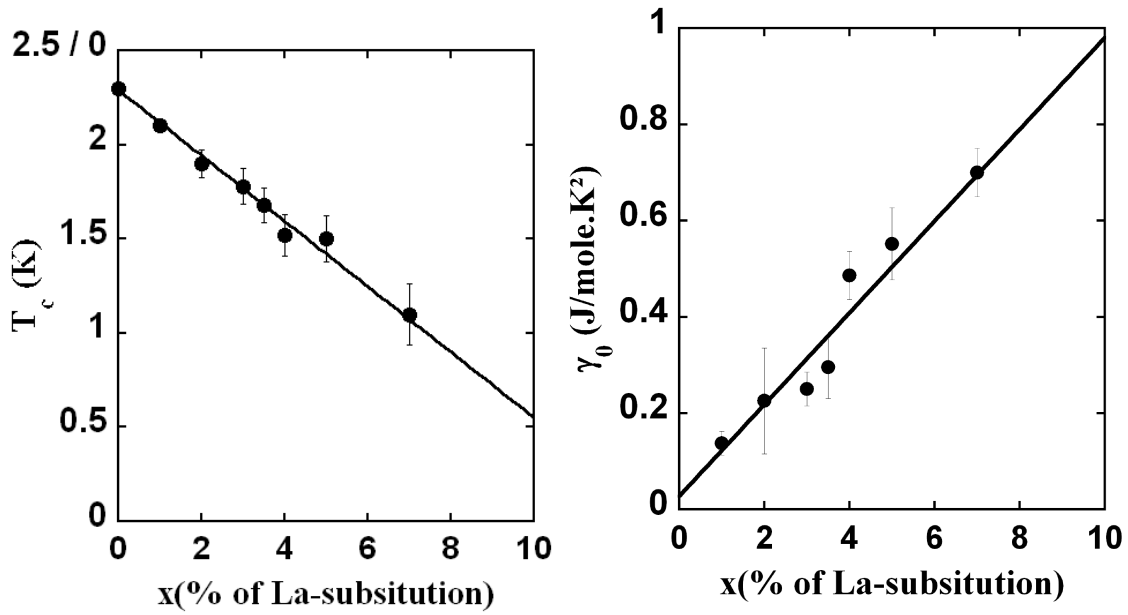


FIGURE 4.3 – **Figure de gauche :** Évolution de la température critique T_c en fonction de la substitution La donnée en pourcentage. La courbe est un fit linéaire. **Figure de droite :** Évolution du coefficient de Sommerfeld γ_0 en fonction de la substitution La donnée en pourcentage. La courbe est un fit linéaire.

Lanthane une diminution avec l’augmentation du Nd dans le cristal. Si on compare les deux diminutions, on peut constater qu’elles sont très similaires. La valeur de γ_0 ne peut pas être obtenue à cause de la présence de la seconde transition à T_m .

Enfin, la substitution au Néodyme va entraîner une pression chimique positive puisque le Néodyme a un rayon atomique plus petit que celui du Cérium. Pour 5% de Néodyme, la pression chimique positive est estimée à 0.5 kbars. Or la température critique de CeCoIn_5 augmente avec une pression positive et on a pu constater que le Néodyme baisse la température critique. Ce résultat prouve, que comme pour le Lanthane, que le "pair-breaking" dû aux impuretés est l’effet dominant.

4.4 Substitution au lanthane

4.4.1 Expérience en diffusion inélastique de neutrons pour une concentration $x \leq 3.5\%$

Dans cette partie sont présentées les mesures de diffusion inélastique de neutrons réalisées sur des substitution de 0%, 2% et 3.5%. Les résultats obtenus avec une substitution de 5% seront présentés séparément vu que leurs analyses diffèrent des autres valeurs de substitutions.

Conditions expérimentales

Le montage utilisé pour les expériences consiste en deux plaquettes d’aluminium sur lesquelles sont collés les monocristaux de $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{CoIn}_5$. Les cristaux sont collés grâce à de la graisse FOMBLIN qui présente l’avantage d’avoir une diffusion incohérente inférieure à celle de la superglue (cyanoacrylate) utilisée auparavant du fait de l’absence d’hydrogène. La différence de diffusion est présentée sur la Fig.4.7.

Les plaquettes sont vissées à un support en cuivre lui-même recouvert d’une fine feuille de cadmium, absorbeur de neutrons, afin d’éviter toute perturbation due à la diffusion par le cuivre. Le tout est ensuite installé sur l’appareil cryogénique utilisé selon l’expérience. Les mesures neutrons ont été effectuées à l’Institut Laue Langevin sur les spectromètres trois-axes à neutrons froids IN12 et IN14 et au Laboratoire Léon Brillouin sur les spectromètres trois-axes à neutrons froids 4F1 et 4F2. La qualité individuelle de chaque monocristal est très bonne avec une mosaïcité inférieure à 0.2° . L’ensemble de monocristaux (environ 30 plaquettes) a une

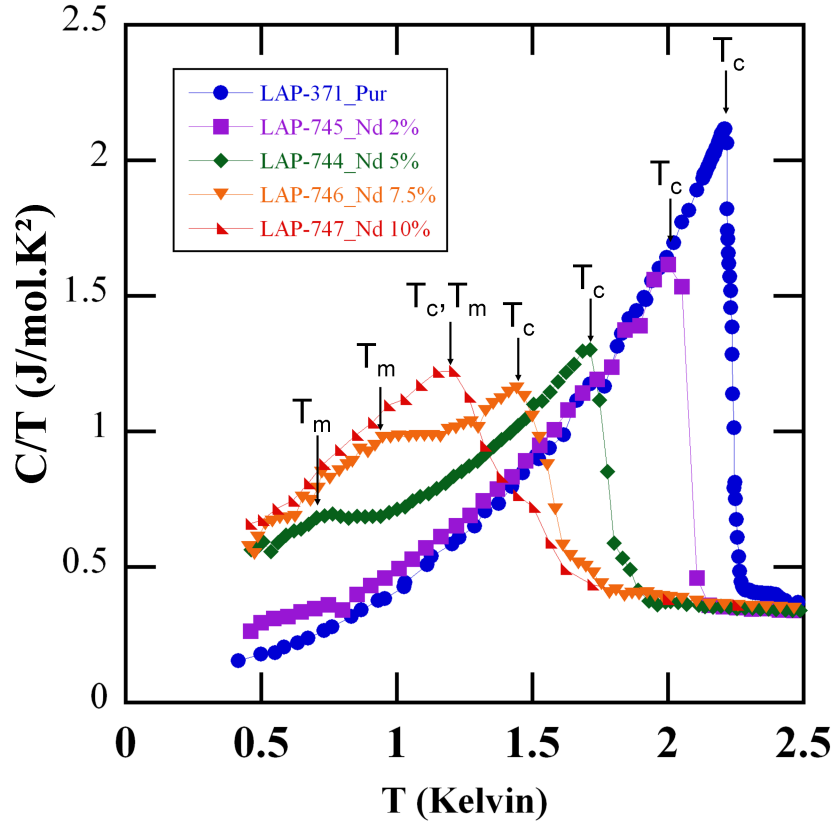


FIGURE 4.4 – Chaleur spécifique divisée par la température en fonction de la température et de la substitution Néodyme. On pourra noter que pour certaines valeurs de substitutions, on a deux transitions : la transition supraconductrice qui a lieu à T_c et une transition magnétique qui a lieu à T_m . Pour une substitution de 10% de Nd, les deux températures de transitions sont trop proches pour qu'on puisse les différencier.

mosaïcité d'environ 1° . Le volume typique est approximativement de 100 mm^3 . Les directions $[1,1,0]$ et $[0,0,1]$ définissent le plan de diffusion pour chaque expérience.

Le faisceau de neutrons incident était focalisé verticalement par un monochromateur en graphite pyrolytique (GP) (par un double monochromateur sur 4F1 et 4F2) et traité par un analyseur également en GP et focalisé horizontalement (et verticalement pour IN14). Afin d'éviter toute contamination $\lambda/2$, un filtre béryllium a été placé avant l'échantillon (donc sur k_i). Les mesures ont été faites à $k_f = 1.2 \text{ \AA}^{-1}$ sur IN12 pour $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{CoIn}_5$, $k_f = 1.3 \text{ \AA}^{-1}$ sur IN14 et IN12 pour CeCoIn_5 et $\text{Ce}_{0.98}\text{La}_{0.02}\text{CoIn}_5$, $k_f = 1.35 \text{ \AA}^{-1}$ sur 4F2 pour $\text{Ce}_{0.965}\text{La}_{0.035}\text{CoIn}_5$. Les spectres sont mesurés jusqu'à l'énergie de coupure du filtre Béryllium (typiquement 1.2 meV dans la gamme de k_f utilisée). Les collimations choisies ont été 60'-ouvert-ouvert, i.e pas de collimation afin d'avoir un maximum d'intensité en bénéficiant de la focalisation horizontale des analyseurs. La résolution en énergie déterminée d'après une mesure sur le signal incohérent est de 0.12 meV sur IN14, 0.10 meV sur IN12 et 0.15 meV sur 4F2 (il s'agit des largeurs totales à mi-hauteur).

Les mesures devant avoir lieu dans la phase supraconductrice, il a donc été nécessaire de refroidir l'échantillon par un appareil cryogénique. Sur IN14 et IN12, nous avons utilisé un insert à ^3He et pour 4F1 et 4F2 un réfrigérateur à dilution sans bain d'hélium 4 (développé par Cryoconcept) prérefroidi par un cryogénérateur à tube pulsé. Sur chaque expérience des diaphragmes ont été mises avant et après l'échantillon afin de réduire au maximum le bruit de fond. Les fenêtres ont été ajustées via des mesures de diffusion de neutrons sur les pics de Bragg des cristaux pour la fenêtre de devant et de manière géométrique pour la fenêtre située après l'échantillon. Une photo d'un montage typique est présentée sur la figure 4.8.

Le bruit de fond de chaque spectre a été obtenu en faisant l'acquisition d'un spectre en énergie décalée en \mathbf{Q} . Ainsi pour IN12 et IN14, ce spectre a été mesuré en $\mathbf{Q} = (0.8, 0.8, \frac{1}{2})$. A cette valeur de \mathbf{Q} , toute l'intensité

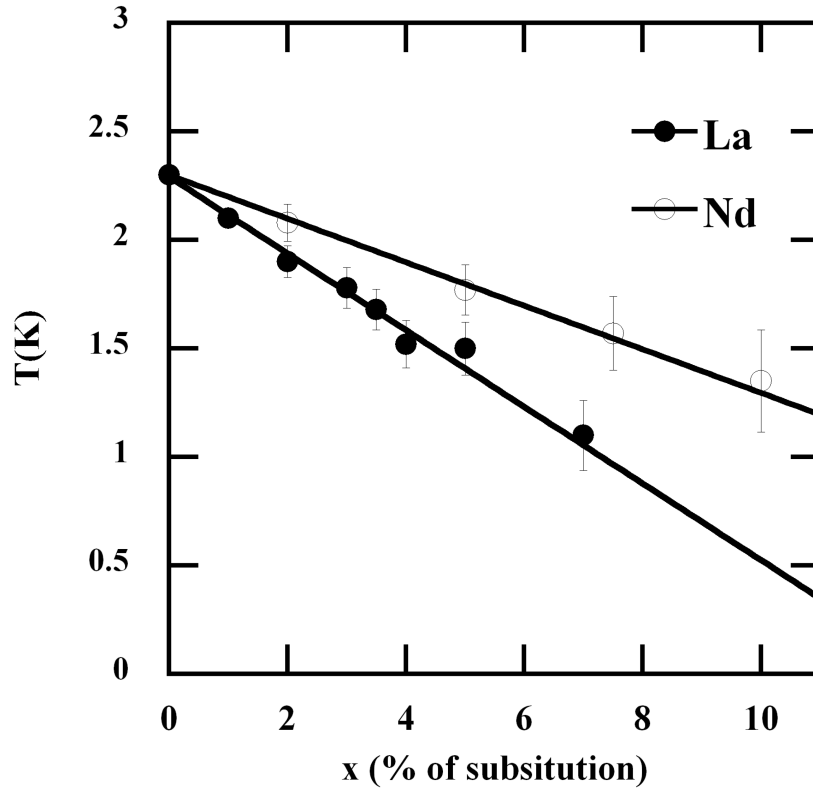


FIGURE 4.5 – Évolution de la température critique supraconductrice en fonction des deux types de substitutions étudiées : La et Nd

de la résonance disparaît et il ne reste que le bruit de fond et le signal incohérent. Cependant sur 4F1 et 4F2, les rotations autorisées du porte-échantillon et du détecteur ne donnaient pas accès au \mathbf{Q} précédemment choisi. Aussi le spectre de bruit de fond a été mesuré en $\mathbf{Q} = (0.412, 0.412, 0.8)$. Le décalage dans la zone de Brillouin est inférieur par rapport au vecteur \mathbf{Q} choisi sur IN12 et IN14, mais on se déplace dans les deux directions afin d'être sûr de ne pas "voir" le signal. Enfin une dernière manière d'obtenir le bruit de fond a été de mesurer le signal à haute température c'est-à-dire avec $T > T_c$. Cette méthode a été utilisée pour tous les spectres réalisés en faisant varier \mathbf{Q} car si le signal mesuré a une structure en \mathbf{Q} à haute température [Stock 2008] il est par contre de très faible intensité. Dans la plupart de mesures, cette structure n'a pas été observée.

Mesures neutroniques sur les substitutions de La

Les spectres des excitations magnétiques, mesurés à $\mathbf{Q} = (\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ en fonction de l'énergie sont présentés dans la figure 4.9. Les spectres correspondent à des substitutions de 0%, 2% et 3.5%. Les lignes pointillées correspondent au bruit de fond. L'intensité neutronique observée est proportionnelle à la fonction de réponse $S(\mathbf{Q}, E)$.

$$S(\mathbf{Q}, E) = n(E, T) \chi''(\mathbf{Q}, E) \quad (4.1)$$

Pour les spectres en énergie, la formule utilisée pour traiter les données est la "Lorentzienne inélastique".

$$\chi''(\mathbf{Q}, E) = \frac{1}{2} \left[\frac{\chi_Q \Gamma_Q E}{(E - \Omega_{res})^2 + \Gamma_Q^2} + \frac{\chi_Q \Gamma_Q E}{(E + \Omega_{res})^2 + \Gamma_Q^2} \right] \quad (4.2)$$

$n(E, T) = 1/(1 - e^{-E/k_B T})$ est le facteur de Bose, Γ_Q est le taux de relaxation, Ω_{res} correspond à l'énergie de la résonance et χ_Q est la susceptibilité au vecteur \mathbf{Q} . On constate sur la Fig.4.9 que l'effet de la substitution

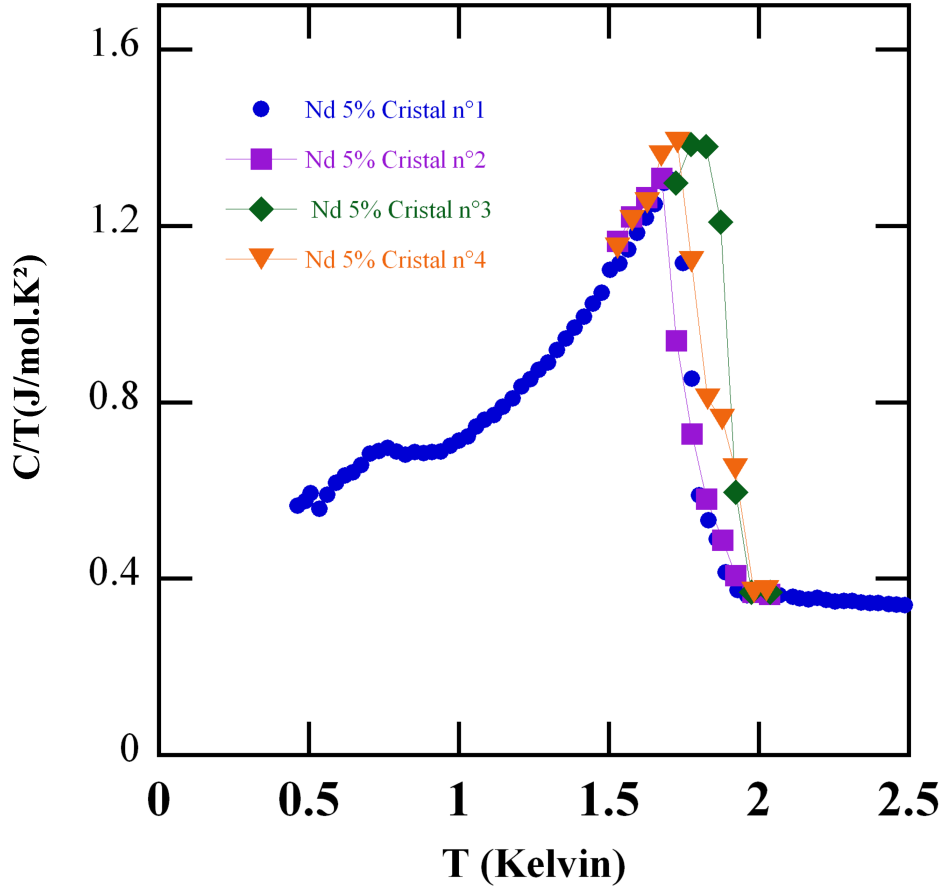


FIGURE 4.6 – Chaleur spécifique divisée par la température pour différents monocristaux de concentration 5% de Néodyme.

est de diminuer l'énergie de la résonance ainsi que d'entraîner un élargissement du pic. Ainsi si dans le composé pur la résonance est à 0.55 meV avec une largeur $\Gamma = 0.07$ meV, une substitution de 2% diminue Ω_{res} à 0.45 meV et élargit le pic à $\Gamma = 0.15$ meV. Une substitution de 3.5% diminue toujours Ω_{res} qui atteint 0.35 meV mais Γ évolue peu, augmentant seulement jusqu'à 0.18 meV. Si on compare la demi-largeur des pics avec la résolution :

- Avec une substitution de 0%, la résolution est de 0.05 meV à comparer avec la largeur de 0.07 meV. On est à la limite de pouvoir utiliser le modèle de la Lorentzienne inélastique sans convolution avec la résolution.
- Par contre pour les substitution à 2% et 3.5%, la résolution est de 0.06 meV pour le 2% et 0.07 meV pour le 3.5%. Avec des largeurs de pic d'environ 0.15 meV, l'absence de convolution est *a posteriori* justifiée.

Spectres en énergie

Les paramètres de fit obtenus pour les spectres inélastiques sont montrés sur la figure 4.10. Sur cette figure, on peut observer l'évolution de l'énergie de la résonance en fonction la substitution-La qui diminue avec une pente de $(-0.058\Omega_{res})/(1\% \text{ de La substitution})$. La largeur de la résonance quant à elle augmente avec le dopage jusqu'à une valeur d'environ 0.18 meV (demi-largeur à mi-hauteur). On pourrait lier cette saturation à la largeur du quasi-élastique mesurée dans la phase non-supraconductrice (pour $T > T_c$) qui présente une largeur de 0.3 meV [Stock 2008]. On peut également noter qu'avec $\Omega_{res} = 0.35$ meV et une demi-largeur de $\Gamma = 0.18$ meV, la résonance avec une substitution de 3.5% n'est plus très bien définie et la question de la fonction utilisée pour décrire l'excitation pourrait se poser (Lorentzienne inélastique ou signal quasi-élastique). Cependant le

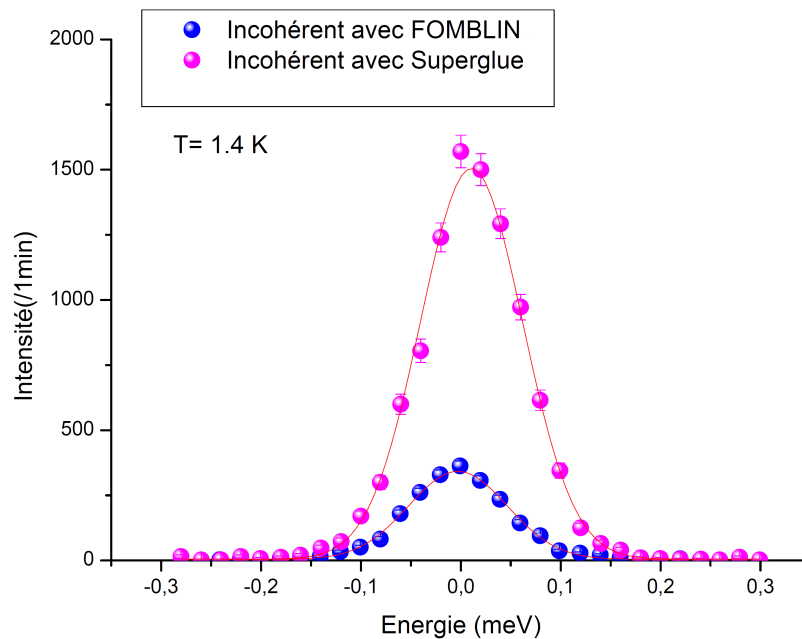


FIGURE 4.7 – Spectres incohérents aux angles de diffusion correspondant à $Q=(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ dans CeCoIn_5 (voir texte) sur un montage composé uniquement d'une plaque en aluminium et de la colle. Deux types de colles sont testées : la superglue et la FOMBLIN, la masse de colle utilisée étant identique entre les deux spectres. On peut constater qu'à quantité égale, la FOMBLIN présente un incohérent beaucoup plus faible que la superglue.

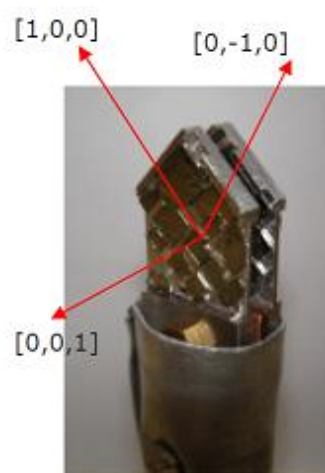


FIGURE 4.8 – Photo du montage typique utilisé lors des expériences de diffusion de neutrons. Les flèches indiquent les directions cristallographiques de la structure tétragonale.

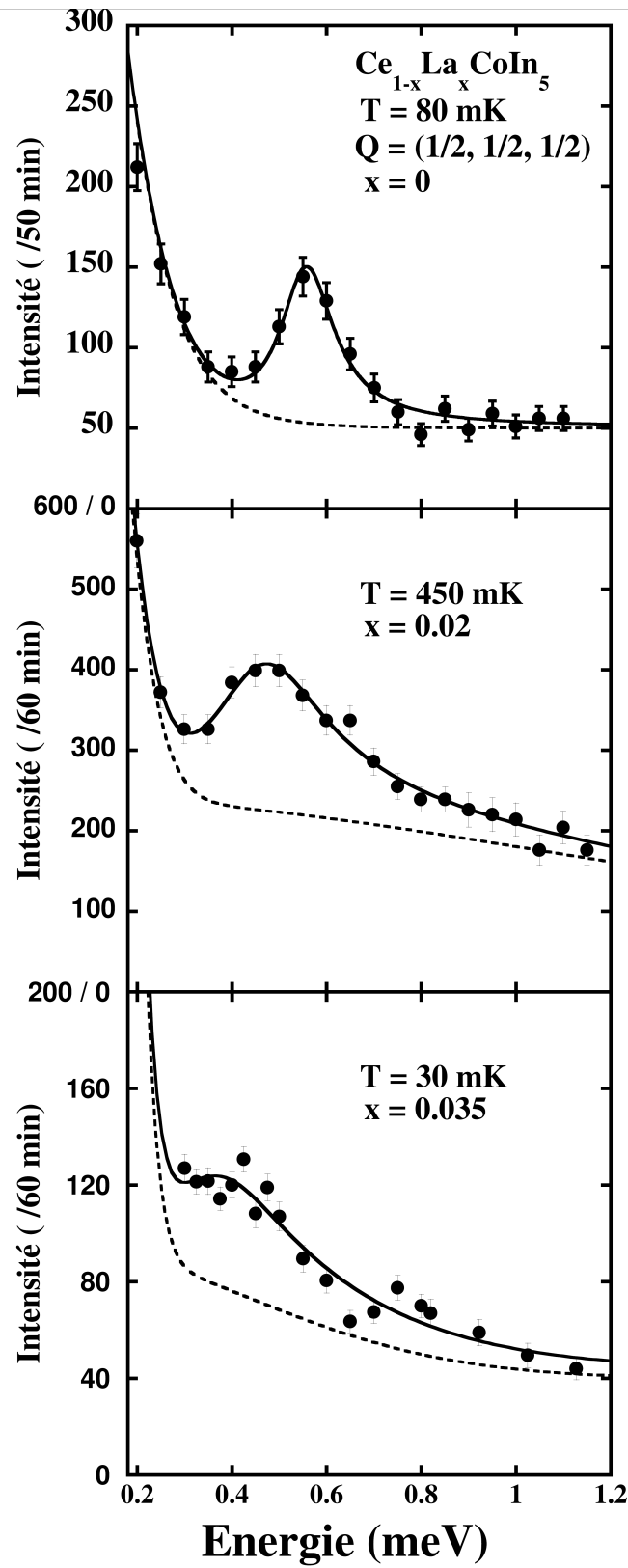


FIGURE 4.9 – Spectres d’excitations mesurés en $\mathbf{Q} = (\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ pour $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{CoIn}_5$ avec $x = 0, 0.02$ et 0.035 . Les fits correspondent à la "Lorentzienne inélastique" et les lignes pointillés indiquent le bruit de fond (description dans le texte).

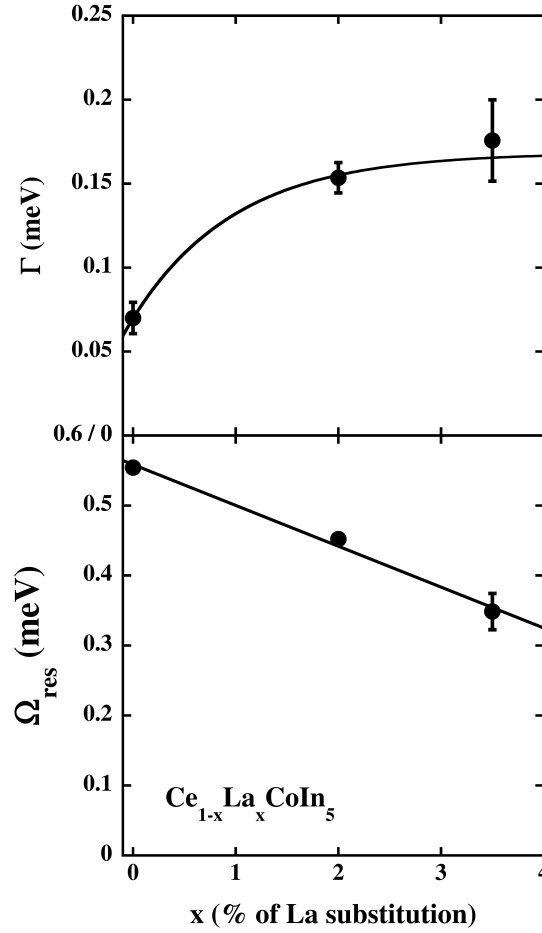


FIGURE 4.10 – Évolution du taux de relaxation Γ et de l'énergie de la résonance Ω_{res} en fonction de la substitution-La dans CeCoIn_5 . Les courbes correspondent à un fit linéaire dans le cas de l'évolution de l'énergie de la résonance et pour le taux de relaxation à un guide pour les yeux.

signal devenant purement quasi-élastique à partir de 5%, on peut supposer que le pic reste inélastique à 3.5%.

Finalement si on compare la diminution de Ω_{res} avec celle de la température critique T_c , on peut constater qu'elles sont proches : la substitution lanthane supprime la supraconductivité à $-0.0077T_c/(1\% \text{ de substitution de La})$, valeur proche de celle de $(-0.058\Omega_{res})/(1\% \text{ de La substitution})$.

Scans en Q

Des scans à énergie constante ont été effectués sur les différents cristaux de $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{CoIn}_5$ suivant la direction $[q, q, \frac{1}{2}]$ et la direction $[\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, q]$ afin de déterminer les longueurs de corrélation de la résonance avec dopage. La figure 4.11 présente les scans collectés à une énergie de 0.55 meV pour le composé sans substitution, 0.45 meV pour une substitution 2% et 0.4 meV pour une substitution de 3.5%. Les scans ont été analysés par un fit gaussien représenté en trait plein sur la figure. Le bruit de fond a été obtenu en mesurant les mêmes scans à une température supérieure à la température critique de chacune des substitutions sauf pour le composé pur où aucune mesure de bruit de fond n'a été faite puisqu'elles ont déjà été présentées dans [Stock 2008].

La figure 4.11 montre que la résonance reste centrée en $(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ pour toutes les substitutions. On peut constater une dégradation du signal avec la présence d'impuretés dans le matériau. En effet, si les pics sont très bien définis pour le composé pur, on remarque des perturbations sur le scan avec une substitution de 2% avec un bruit de fond décrit par une forte pente. Les scans sont même inutilisables à partir d'une certaine substitution comme pour le scan suivant la direction $(H, H, 1/2)$ pour le 3.5%. Pour ce scan mesuré sur 4F2, il n'était pas possible d'obtenir $H < 0.4$ (r.l.u) à cause de la géométrie du spectromètre. De plus, le scan ne

TABLE 4.2 – Longueurs de corrélations dans le plan (ξ_a) et suivant l'axe- c (ξ_c) en fonction de la substitution La.

La-substitution	ξ_a	ξ_c
0 (Panarin)	12.2 ± 0.7	10.0 ± 0.5
0 (Stock)	9.6 ± 1.0	6.5 ± 0.9
0.02	11.8 ± 0.6	5.1 ± 0.1
0.035	-	6.4 ± 0.2

présente aucun pic avec une statistique satisfaisante. Ainsi la courbe pour ce scan est présentée uniquement pour illustrer les difficultés de mesure. Enfin toujours pour le 3.5%, on peut constater que le signal à haute température présente une structure en **Q**. Ceci peut-être dû à des problèmes de mesure (présence d'un spurion) ou alors à la persistance d'un signal magnétique structuré qui serait sans doute de nature quasi-élastique. Cette problématique du signal quasi-élastique sera présentée dans la partie suivante avec les mesures sur le composé à 5%. Afin d'obtenir les longueurs de corrélations, nous avons pris l'inverse de la largeur à mi-hauteur du fit gaussien pour un scan à énergie fixée ω^* :

$$S(\mathbf{Q}, \omega^*) = S(\omega^*) e^{-\ln(2)(\frac{q}{\sigma/2})^2} \quad (4.3)$$

$$\xi_{a/c} = \frac{a/c}{2\Pi\sigma} \quad (4.4)$$

Les longueurs de corrélations obtenues sont présentées dans le tableau 4.2. Si on considère les valeurs de Stock et *al.*, on peut constater que les longueurs de corrélations évoluent peu avec l'introduction d'impuretés. Ainsi la longueur de corrélation suivant c va rester stable sur les trois différentes valeurs de dopage. Et celle dans le plan évolue également remarquablement peu. Une telle stabilité des longueurs de corrélations peut-être liée à la faible densité d'impuretés. En effet, avec une distance entre impuretés valant plusieurs dizaines de fois le paramètre de maille, on peut s'attendre à ce que la résonance dont la longueur de corrélation vaut quelques paramètres de maille ne soit pas sensible aux impuretés.

Par contre, nos mesures dans le composé pur aboutissent à une longueur de corrélation ξ_c environ deux fois supérieure à la valeur de Stock et *al.*. Il est difficile de se prononcer sur les raisons de cette différence surtout que la valeur obtenue par Stock *et al.* est confirmée par les mesures dans les impuretés.

Évolution en température

On peut ensuite s'intéresser à l'évolution en température de la résonance dans les composés substitués au La. Dans le composé pur, la résonance a été observée uniquement dans la phase supraconductrice et le pic se décale vers les basses énergies avec l'augmentation de la température. Nous avons étudié la dépendance en température d'un composé substitué à 2% de La. Les spectres sont montrés sur la figure 4.12 (cadre de gauche). La figure 4.12 (cadre de droite) montre l'évolution de $\Omega_{res}/\Omega_{res}(T=0)$ en fonction de T/T_c pour un composé pur 0% (extraite de [Stock 2008]) et le composé substitué. On peut constater que l'évolution en température de Ω_{res} est identique pour les deux systèmes (si on fait une normalisation par T_c).

Cette évolution peut-être expliquée par le lien entre la résonance et le gap supraconducteur. En effet, avec le température le paramètre d'ordre qu'est le gap supraconducteur, va diminuer jusqu'à s'annuler (puisque la transition est de second d'ordre). Une formule d'évolution d'un gap d -wave en température (extraite de [Yang 1998]), valable à basse-température (c'est-à-dire loin de la transition) est :

$$\Delta(T) \approx \Delta_0 \left[1 - 3.61 \left(\frac{k_B T}{\Delta_0} \right)^3 + \mathcal{O}(\Delta_0^{-4}) \right] \quad (4.5)$$

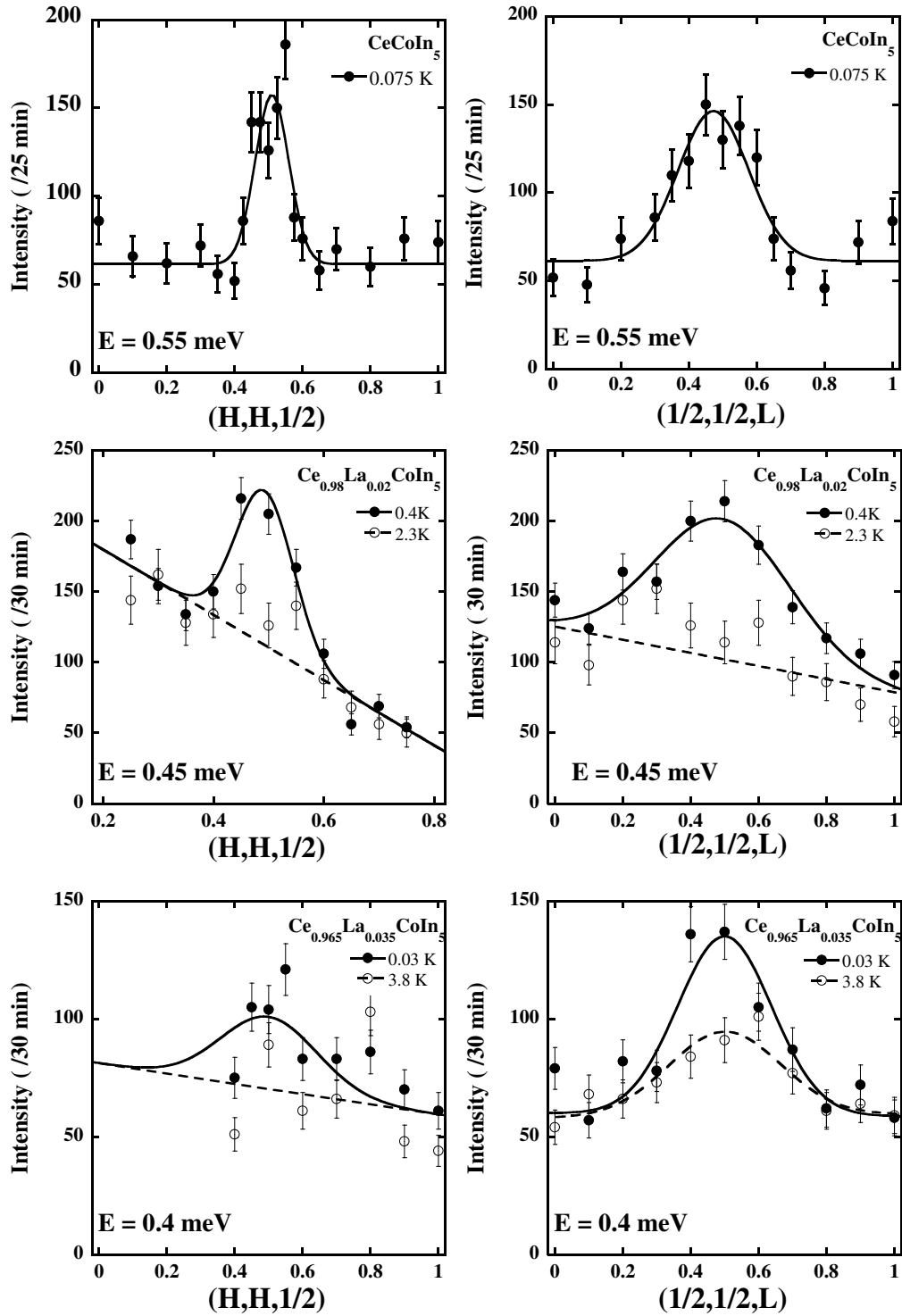


FIGURE 4.11 – Spectres d'excitation mesurés à énergie constante dans la direction $[\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, L]$ et $[H, H, \frac{1}{2}]$ pour $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{CoIn}_5$. x vaut 0, 0.02 et 0.035 avec des énergies pour les spectres respectivement de 0.55 meV, 0.5 meV et 0.45 meV. La ligne pleine correspond à un fit Gaussien de l'excitation et la ligne pointillée indique le bruit de fond mesuré à une température supérieure à T_c .

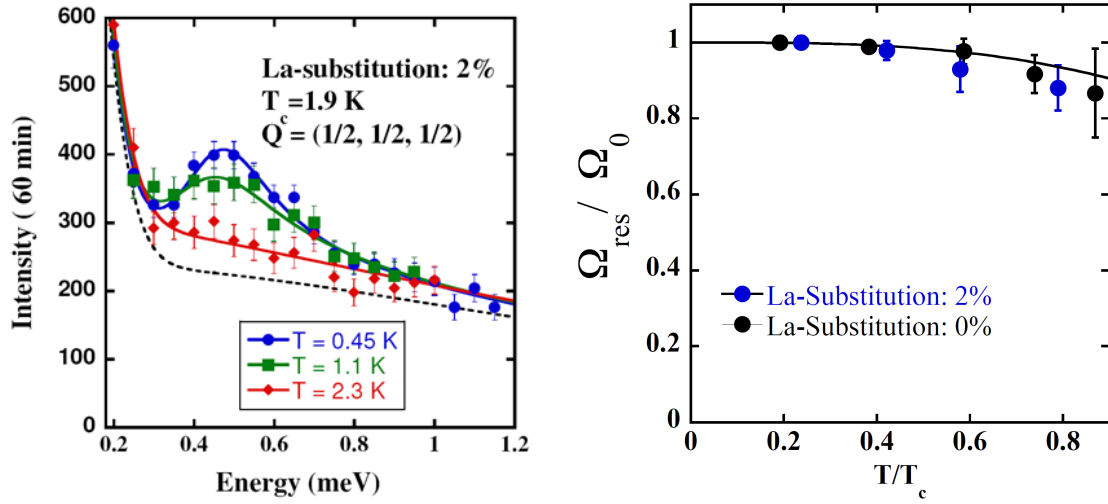


FIGURE 4.12 – **Figure de gauche** : Spectres en énergie mesurés à $\mathbf{Q}=(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ sur un composé avec une substitution 2% en faisant varier la température. Les traits pleins correspondent à des fits utilisant la formule de la "Lorentzienne inélastique" décrite précédemment. La courbe pointillée correspond au bruit de fond mesuré dans le 2% comme décrit précédemment. **Figure de droite** : Évolution de l'énergie de la résonance Ω_{res} de $\text{Ce}_{0.98}\text{La}_{0.02}\text{CoIn}_5$ et CeCoIn_5 (extrait de [Stock 2008]) à $\mathbf{Q}=(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ en fonction du ratio T/T_c pour un composé pur ($T_c=2.3$ K) et pour un composé 2%-substitué ($T_c=1.9$ K). Le trait pointillé correspond au fit d'un gap supraconducteur de type- d (voir dans le texte)

Si on décrit l'évolution de Ω_{res} en température par cette formule, on constate qu'elle rend très bien compte de la dépendance de Ω_{res} à basse température (voir Fig.4.12). Cependant à plus haute température, le fit décroît plus vite que les points expérimentaux. Cette observation est également faite par Stock *et al.* qui l'explique par l'existence possible d'une seconde échelle d'énergie (autre que le gap) dont dépendrait la résonance. Mais puisque la formule utilisée pour le gap n'est valable qu'à très basse température, il ne nous paraît pas nécessaire de faire une telle hypothèse pour expliquer cette divergence à plus haute température.

Le résultat de cette étude en température et la comparaison avec les données obtenues sur le composé non-substitué nous indiquent que la substitution ne change pas l'évolution en température de Ω_{res} qui est étroitement liée à celle du gap supraconducteur.

4.4.2 Observation sur le composé avec une substitution de 5% et données sur le quasi-élastique dans CeCoIn_5

Dans cette sous-partie, nous allons présenter les résultats obtenus sur le composé avec une substitution à 5%. En effet, contrairement à ce que nous avons pu observer dans les précédentes substitutions, la substitution 5% ne présente pas de pic de résonance. L'étude des données est donc très différente de celle déjà réalisée.

Mesures de diffusion inélastique de neutron sur le composé $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{CoIn}_5$

Sur la figure.4.13 sont représentés deux spectres en énergie à $\mathbf{Q}=(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ avec une énergie variant de 0.2 à 1.2 meV pour des températures de 450 mK et 1.8 K. Le fit utilisé pour décrire les spectres correspond à un fit d'un signal quasi-élastique, la formule utilisée pour un signal quasi-élastique étant la suivante :

$$\chi''(\mathbf{Q}, E) = \left[\frac{\chi_Q \Gamma_Q E}{E^2 + \Gamma_Q^2} \right] \quad (4.6)$$

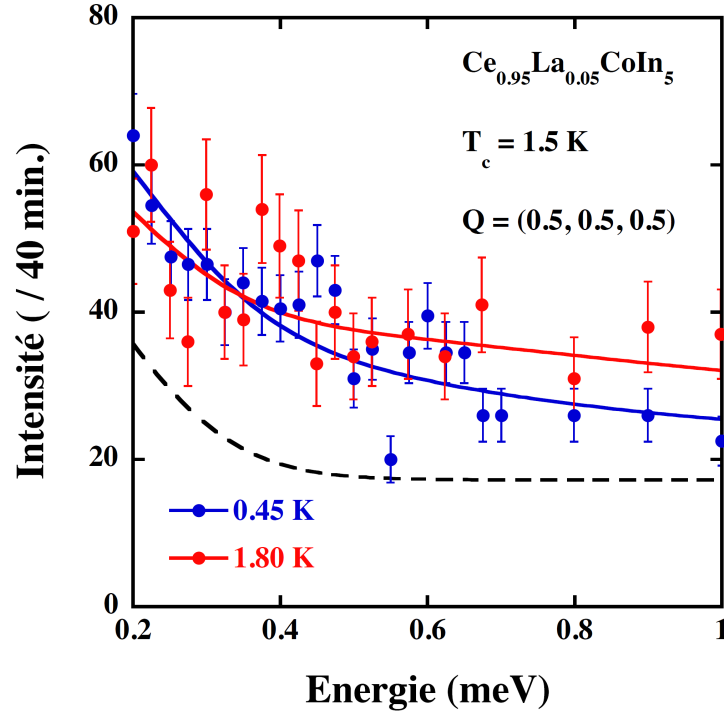


FIGURE 4.13 – Spectres en énergie mesurés $\mathbf{Q}=(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ sur un composé avec une substitution 5% pour des températures de 450 mK et 1.8 K. Les traits pleins correspondent à des fits quasi-élastiques comme décrit dans le texte. Le trait pointillé correspond au bruit de fond mesuré en $\mathbf{Q}=(0.8, 0.8, \frac{1}{2})$.

Spectres en énergie

Avec une substitution de 5%, la largeur du signal quasi-élastique est de $\Gamma = 0.10 \pm 0.02$ meV à $T = 450$ mK (voir Fig.4.13). A titre de comparaison, la largeur du quasi-élastique mesurée par Stock *et al.*, sur le composé pur et à une température de 3 K, est de $\Gamma = 0.3 \pm 0.15$ meV. On a donc un signal quasi-élastique plus étroit que celui observé dans la phase normale. Avec l'augmentation de la température, le signal quasi-élastique évolue et à $T = 1.8$ K, présente une largeur de $\Gamma = 0.25 \pm 0.05$ meV. Il faut noter que le signal magnétique mesuré reste présent alors que $T > T_c = 1.5$ K, ce qui semble indiquer qu'il n'est pas lié à la supraconductivité.

De ce résultat, on peut émettre plusieurs hypothèses. Ainsi le signal peut-être purement quasi-élastique ou alors il s'agit d'un signal inélastique que l'on ne peut extraire de l'incohérent. S'il n'existe pas de différence en terme de fit ou de forme ; en terme d'origine et de nature des excitations magnétiques elle est notable. Si on est dans le cas d'un signal quasi-élastique intrinsèque, alors cela signifie qu'il y a eu un transfert de poids spectral du pic de la résonance jusqu'à un signal à basse énergie. Un tel effet a été observé dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ avec des impuretés Zn [Suchanek 2010]. Nous parlerons de cette comparaison plus en détails plus loin.

Si le signal est inélastique alors on est dans le cas où le pic de la résonance est devenu trop large pour pouvoir être résolu. En effet, si on a un signal inélastique, le pic est attendu à 0.26 meV or la largeur du pic pour une substitution de 3.5% est déjà de 0.3 meV. Il serait donc normal que le pic ne puisse pas être résolu, la valeur mesurée de $\gamma = 0.1$ meV serait alors un artefact du pic non-résolu et n'aurait que peu de signification. La difficulté de cette interprétation est d'expliquer pourquoi il n'y a pas de baisse en intensité à une température supérieure à T_c . Dans les cas où la résonance est observée, il y a une forte différence d'intensité entre le signal de part et d'autre de T_c (voir par exemple Fig. 4.12, panneau de gauche).

Spectres en \mathbf{Q}

Sur le panneau de gauche de la figure 4.14 sont représentés des spectres en \mathbf{Q} suivant $[\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, L]$ à une énergie de 0.45 meV aux températures $T = 0.45$ K et 1.8 K. Le choix de cette énergie a été lié à notre résolution et à

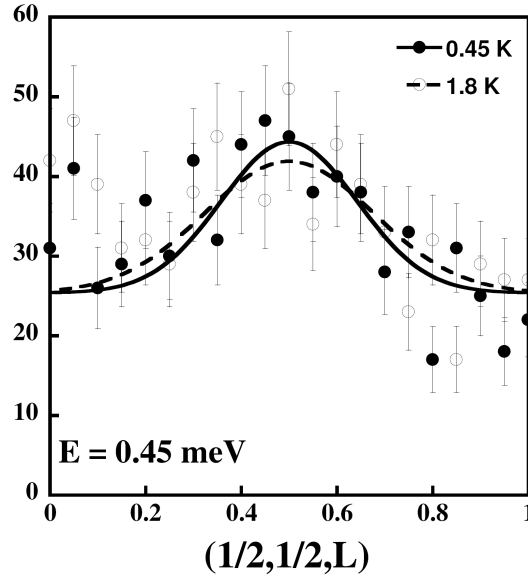


FIGURE 4.14 – Spectres en \mathbf{Q} suivant la direction $[\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, L]$ à une énergie de $E=0.45$ meV sur $\text{Ce}_{0.95}\text{La}_{0.05}\text{CoIn}_5$ avec une substitution 5% à $T = 0.45$ K et 1.8 K. Les traits pleins et pointillés correspondent à un fit gaussien

l'éloignement par rapport à l'incohérent pour pouvoir mesurer les corrélations du signal magnétique.¹

On peut voir que le signal magnétique observé par les spectres en \mathbf{Q} reste centré en $[\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2}]$. On peut préciser que le signal à haute température dans le composé pur, de nature quasi-élastique, est également centré en \mathbf{Q}_{res} . Une autre observation de ce spectre en \mathbf{Q} est que le signal centré en $[\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2}]$ ne change pas avec la température, aussi bien en intensité qu'en longueur de corrélation et donc n'est pas lié à la supraconductivité puisque les températures choisies sont de part et d'autre de T_c . Cette caractéristique semble indiquer que le signal n'est pas lié à la résonance mais qu'au contraire il s'agirait plutôt d'un signal quasi-élastique dû aux impuretés.

On constate donc que le contraste entre le signal magnétique à basse température et à haute température s'amenuise quand la concentration en lanthane augmente. En effet, il est quasiment inexistant dans le 5% et déjà notablement diminué dans le 3.5 % en comparaison du 2% (voir les scans en \mathbf{L} de la Fig. 4.11).

Si on résume les informations apportées par chacune des mesures précédentes, on obtient qu'il existe un signal quasi-élastique corrélé en \mathbf{Q} dont la largeur en énergie augmente avec la température alors que la largeur en \mathbf{Q} reste constante et existe indépendamment de la résonance de spin. Ce signal quasi-élastique existe déjà pour une substitution de 3.5% et augmente en intensité relativement à l'intensité de la résonance de spin pour 5% de substitution.

4.4.3 Conclusion sur les mesures de substitution La

Les résultats présentés ont permis de constater plusieurs effets intéressants des impuretés sur la supraconductivité et la résonance de spin. Tout d'abord on a pu voir par les mesures de chaleur spécifique, l'effet d'une impureté sur un gap supraconducteur de type d avec un très fort effet sur la température critique et un élargissement notable de la transition. L'augmentation du coefficient de Sommerfeld de manière linéaire indique bien que l'on a un effet lié aux impuretés et non de désordre. La conséquence de cette diminution de T_c est une diminution du gap supraconducteur comme il a été présenté par Sun et Maki dans leur article [Maki]. Ces mesures de chaleur spécifique nous ont permis de déterminer les T_c des composés que nous avons mesuré par diffusion inélastique des neutrons.

Les mesures sur les composés substitués à 2% et 3.5% ont mis évidence l'effet des impuretés non-magnétiques sur la résonance qui est une diminution de son énergie ainsi qu'une augmentation de sa largeur. Ces deux évo-

1. Dans l'hypothèse où l'excitation serait toujours inélastique alors on aurait $\Omega_{res}=0.26$ meV dans l'hypothèse où le taux de suppression de Ω_{res} par les impuretés reste constant. Or à cette énergie, le signal magnétique est largement surpassé par l'incohérent.

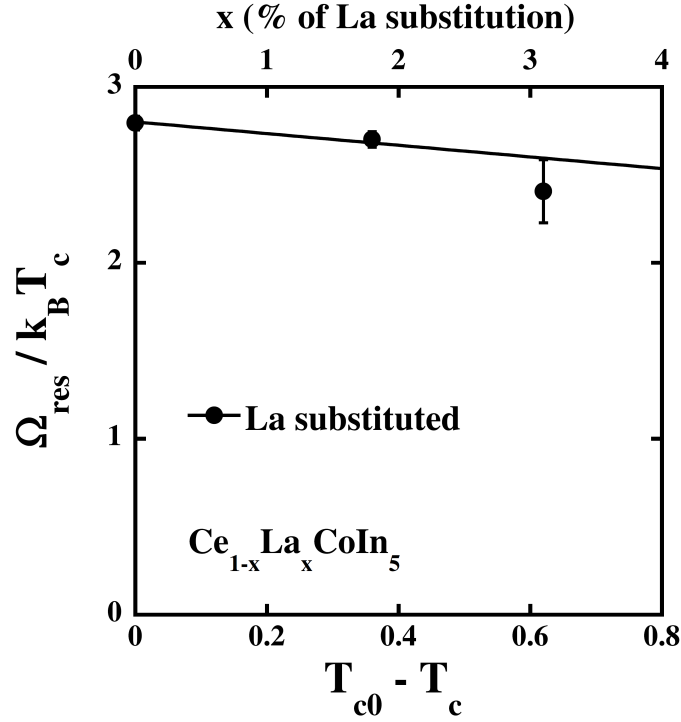


FIGURE 4.15 – Évolution de l'énergie de la résonance Ω_{res} divisée par la température critique en fonction de $T_{c0} - T_c$ avec $T_{c0} = T_c$ pour le composé pur.

lutions ont été constatées dans un article théorique qui traite l'effet des impuretés non-magnétiques dans le cas du cuprate $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ [Li 1998]. Nos observations sont en concordance avec ce qui a été établi avec une structure électronique pourtant différente de celle de CeCoIn_5 . L'augmentation de la largeur est expliquée par une diffusion des impuretés qui réduisent la durée de vie de l'excitation ([Li 1998]. La diminution de l'énergie de la résonance peut être dans une première approximation expliquée par un effet d'impureté sur le gap supraconducteur. En effet, dans les travaux de [Sun 1995], il a été constaté que l'introduction d'impuretés diminue la température critique et le gap de manière équivalente. Or Ω_{res} est déterminé par le gap supraconducteur dans le modèle de l'exciton [Eremin 2008]. Ainsi toute diminution du gap supraconducteur correspond à une diminution en énergie de la résonance.

Ainsi si T_c et Ω_{res} sont proportionnels au gap supraconducteur alors le ratio $\Omega_{res}/k_B T_c$ en fonction de T_c devrait être constant. Il est représenté sur la figure 4.15 en fonction de $T_{c0} - T_c$ avec $T_{c0} = T_c$ dans le composé pur. On peut constater que le ratio ne change que peu avec la diminution de T_c confirmant notre hypothèse.

Cependant la faible pente indique qu'il y a un autre facteur qui rentre en jeu. Les explications pour cette pente non nulle sont multiples :

- Tout d'abord le faible nombre de mesures (trois concentrations uniquement)
- Ensuite on peut supposer que l'apparition d'un signal quasi-élastique avec les impuretés entraîne une perturbation des fits effectués notamment pour la substitution à 3.5%. Le mélange entre le signal quasi-élastique et le pic de résonance, très difficile à séparer, fausse sans aucun doute la position du pic en énergie.
- Finalement, on ne peut pas exclure que les impuretés modifient les interactions, ce qui changerait la position en énergie de la résonance.

Concernant la substitution 5%, on a pu constater que la résonance n'est pas observable ; nous discuterons ce point lors de la comparaison avec $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$.

4.5 Substitution au Néodyme

Contrairement aux impuretés non-magnétiques, les impuretés magnétiques ont un effet notable sur la supraconductivité s -wave. Pour un supraconducteur d -wave, les deux types d'impuretés ont un effet similaire. Pour CeCoIn_5 , l'impureté magnétique retenue a été le Néodyme qui a une configuration électronique $4f^3$. Le choix du Néodyme est aussi lié à l'apparition d'une phase magnétique à partir d'une substitution de 3% à basse température dans la phase supraconductrice. Ceci rajoute un paramètre à notre étude de la résonance. Non seulement nous pouvons étudier l'effet d'impureté magnétique mais également étudier comment se comporterait la résonance avec l'apparition d'un ordre magnétique.

4.5.1 Expériences en diffusion inélastique de neutrons pour une concentration $x = 5\%$

Conditions expérimentales

Les mesures de diffusion inélastique de neutrons ont été faites au Laboratoire Léon Brillouin sur le spectromètre trois-axes à neutrons froids 4F1. L'environnement échantillon choisi est un réfrigérateur (le même que celui utilisé sur 4F2 lors de l'expérience sur la substitution lanthane). Suite à un problème technique, la dilution est restée bloquée à une température stable de 1.1 K supérieure au 30 mK normalement atteignable. Ainsi nous avons pu faire des mesures dans la phase supraconductrice par contre il fut impossible de faire des mesures dans la phase magnétique (en effet $T_m \approx 0.4$ K pour la substitution retenue).

Spectres en énergie et en Q

Les spectres inélastiques que nous avons mesurés reprennent le *modus operandi* déjà utilisé. Sur la figure 4.16 (figure du haut) est montré un spectre en énergie à Q constant ($Q = (\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$) avec un bruit de fond mesuré en se décalant en Q avec $Q = (\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, 0.2)$. La résonance est observée à $\Omega_{res} = 0.41$ meV et présente une largeur de $\Gamma_Q = 0.10 \pm 0.012$ meV. A titre de comparaison cette valeur est supérieure à la demi-largeur mesurée pour le composé pur ($\Gamma_Q = 0.07$ meV) mais est inférieure à celle obtenue pour une substitution La de 2% ($\Gamma_Q = 0.15$ meV). Le ratio $\frac{\Omega_{res}}{k_B T_c}$ est d'environ 2.7, proche de la valeur obtenue dans le composé pur. Pour comparaison avec le dopage Lanthane, la figure 4.16 (figure du bas) montre le spectre obtenu pour 2% de La qui a un T_c proche du 5% de Nd.

Sur la figure 4.17 est montré le spectre suivant l'axe c à une énergie constante de $E = 0.45$ meV. On peut constater que l'énergie utilisée ne correspond pas au centre de la résonance tel que nous l'obtenons par fit mais est centrée sur le maximum d'intensité du pic. La résonance reste positionnée en $Q = (\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ et présente une longueur de corrélation de $\xi_c = 6.5 \pm 0.1$ Å. La longueur de corrélation est identique à celle mesurée par Stock *et al.* dans le composé pur. Aucun spectre suivant la direction $[H, H, \frac{1}{2}]$ n'est présenté à cause des limitations géométriques du spectromètre.

4.5.2 Conclusion sur les mesures de substitution Nd

On a donc pu constater que le Nd diminue l'énergie de la résonance que nous interprétons comme pour le Lanthane par une diminution du gap SC. La longueur de corrélation suivant l'axe- c ne change pas avec la substitution Nd (comme pour le Lanthane). Une différence serait l'élargissement de la résonance de spin qui serait moindre pour le Néodyme que pour le Lanthane, mais ce résultat demanderait une confirmation grâce à d'autres mesures sur différentes valeurs de substitution.

La prochaine étape de ce travail (peut-être la plus riche en information) sera de réaliser une expérience de diffusion inélastique dans la phase antiferromagnétique afin de sonder l'évolution de la résonance en présence d'un ordre magnétique dont les caractéristiques sont par ailleurs inconnues (vecteur de propagation et direction des moments). Plusieurs scénarios sont possibles mais le plus excitant serait une condensation de la résonance qui aboutirait à l'ordre magnétique.

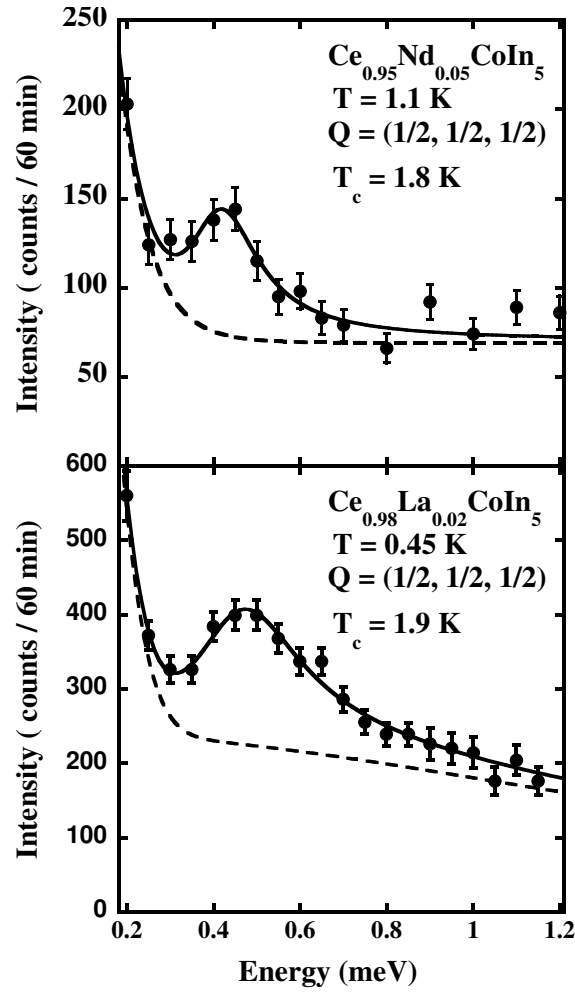


FIGURE 4.16 – Spectres inélastiques en fonction de l'énergie à $Q = (\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ pour **Figure du haut** : une substitution de 5% de Nd. **Figure du bas** : une substitution de 2% de La.

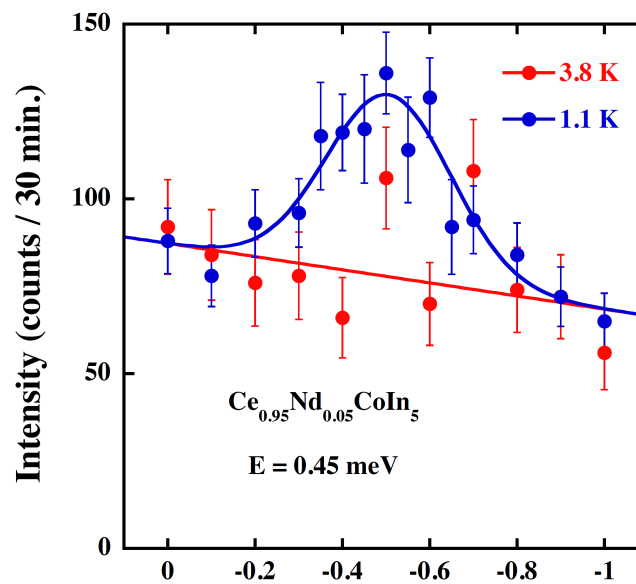


FIGURE 4.17 – Spectre inélastique à énergie constante $E = 0.45 \text{ meV}$ suivant la direction $[\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, L]$. Le trait plein correspond à un fit gaussien et le trait pointillé à un fit linéaire du signal à haute température.

4.6 Comparaison de la substitution La avec $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ dopé aux Zn et Ni

Nous avons présenté dans les parties précédentes, nos résultats obtenus sur la substitution de Ce par une impureté non-magnétique et une impureté magnétique. Or des expériences similaires ont été faites sur le cuprate $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ avec des impuretés magnétiques Ni et non-magnétiques Zn que l'on met à la place du Cu. Les expériences les plus proches de la notre sont celle réalisées par Fong et Sidis sur les impuretés Zn et Ni dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ [Fong 1999a] [Sidis 2000].

Le cas du Zn a été largement étudié car l'introduction de Zn dans YBCO entraîne de nombreuses conséquences qui vont plus loin que l'effet d'une impureté dans un d -wave. Mais si on regarde de manière quantitative les effets sur la résonance et la supraconductivité on peut obtenir plusieurs informations : Si les deux impuretés (Zn et Ni) suppriment la supraconductivité l'effet du Zn est bien plus drastique : $(\approx -0.13T_c)/(1\%$ de substitution Zn) à comparer avec $(\approx -0.04T_c)/(1\%$ de substitution Ni) [Sidis 2000]. Si le Zn a un effet bien plus fort sur la supraconductivité, il a par contre que peu d'effet sur la résonance. Ainsi 1% de Zn ne va pas déplacer la résonance en énergie contrairement au Ni. Pour une comparaison valable entre les deux substitutions, les expériences se focalisent sur deux substitutions qui aboutissent à peu près au même T_c (pour 1% de Zn, $T_c = 78$ K, pour 3% de Ni, $T_c = 80$ K). En effet, 3% de Ni déplace la résonance vers les basse-énergies en respectant le ratio $\Omega_{res}/k_B T_c$. Les spectres en énergie avec les deux types d'impuretés sont montrés sur le panneau de gauche de la figure 4.18.

On a donc dans YBCO que la substitution Zn ne respecte pas le ratio $\Omega_{res}/k_B T_c$ mais au contraire l'augmente (car T_c diminue) par contre la substitution Ni conserve le ratio. En ce qui concerne la largeur en énergie du pic de résonance, aucun effet notable n'est observé pour YBCO (contrairement à CeCoIn_5) pour les deux impuretés. Mais le pic de résonance dans YBCO est très large en énergie en comparaison de CeCoIn_5 à cause d'une distribution de résonance causée par une concentration en oxygène difficile à homogénéiser dans le matériau. Plus intéressant est dans le cas du Zn l'observation de l'existence d'intensité magnétique au delà de T_c à l'emplacement du pic de résonance indiquant une persistance de la résonance de spin ou tout du moins l'existence d'un signal magnétique.

Enfin si on regarde une étude récente de diffusion inélastique sur $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$ substitué au Zn (2%) [Suchanek 2010], on peut constater un transfert de poids spectral de la résonance à des états de basses énergies avec apparition d'un large signal quasi-élastique. Ce signal est lié à un ordre magnétique incommensurable mesuré par des spectres en \mathbf{Q} et la largeur en \mathbf{Q} de l'excitation est liée à la densité d'impuretés dans le système (voir Fig. 4.18, panneau de droite).

Les résultats obtenus sur $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ apportent plusieurs informations intéressantes pour la compréhension de ce que nous avons pu observer dans CeCoIn_5 avec une substitution de La et Nd. Tout d'abord, on peut constater qu'à basses concentrations, le Néodyme et le Lanthane sont très semblables au cas du Nickel dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ avec une diminution de T_c et de Ω_{res} tout en conservant le ratio $\frac{\Omega_{res}}{k_B T_c}$.

Cependant à plus hautes concentrations dans le cas du Lanthane, on observe que les signaux sont assez similaires de part et d'autre de T_c . Cela rappelle le cas du Zinc dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ où à la fois un transfert de poids spectral est observé vers les basse-énergies dans la phase supraconductrice [Suchanek 2010] et l'intensité à une énergie proche de la résonance persiste au-delà de T_c [Sidis 2000]. Ces deux phénomènes (Apparition de quasi-élastique sous T_c et persistance de la résonance au-dessus de T_c) sont difficiles à distinguer dans CeCoIn_5 vu qu'ils se produisent à la même échelle d'énergie (de l'ordre de 0.3 meV).

4.7 Comparaison avec les supraconducteurs au Fer

Notre comparaison avec les supraconducteurs au Fer va se baser sur une étude théorique réalisée par Maiti *et al.* [Maiti 2011]. En effet, pour le moment aucune étude neutronique n'a été réalisée dans le but d'étudier les effets d'impuretés sur la résonance dans cette nouvelle classe de supraconducteurs. Les différentes substitutions effectuées dans ces supraconducteurs sont traitées en terme de pression chimique sans se focaliser sur les impuretés. L'article de Maiti *et al.* traite en détails les conséquences du gap s^\pm sur la dynamique de spin

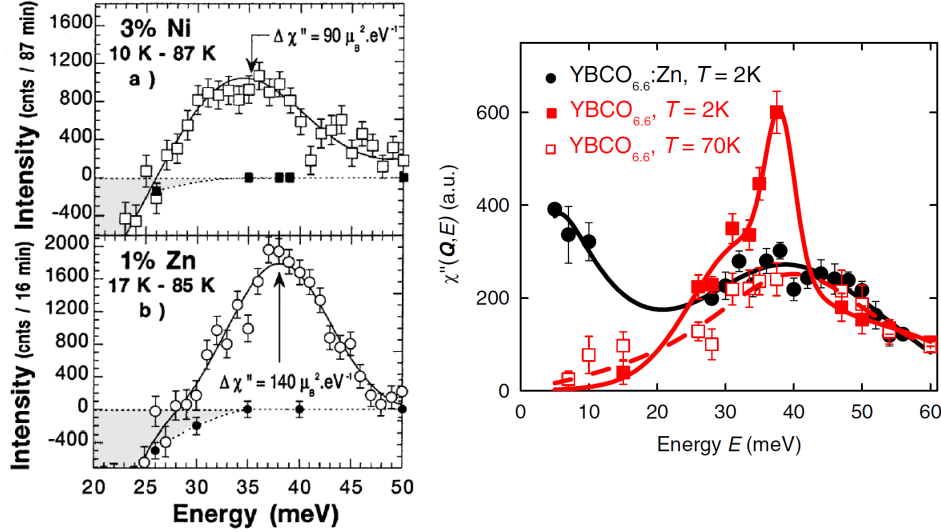


FIGURE 4.18 – **Figure de gauche** : Spectres en énergie à basse température et à $T_c + 7$ K, à $Q_{AF} = (-1.5, -0.5, 1.7)$: (a) YBa₂(Cu_{0.99}Zn_{0.01})₃O₇ (b) YBa₂(Cu_{0.97}Ni_{0.03})O₇. Les lignes sont des guides pour les yeux. Le bruit de fond (mesuré à haute température) a été soustrait aux spectres présentés. La zone grisée correspond à l'apparition d'un bruit de fond nucléaire qui explique la valeur négative obtenue. Extrait de [Sidis 2000]. **Figure de droite** : Dépendance en énergie de la susceptibilité χ'' à $T = 2$ K extrait de spectres à énergie constante sur YBCO_{6.6} dopé Zn et YBCO_{6.6}. L'état normal de YBCO_{6.6} est montré à titre de comparaison. Les lignes sont des guides pour les yeux. Extrait de [Suchanec 2010].

notamment les effets du dopage ou les effets de la structure angulaire du gap ainsi que les effets d'impuretés. Pour rappel, un gap s^\pm signifie que le gap supraconducteur est de type- s mais on a cependant un changement de signe entre des portions différentes de la surface de Fermi (trous et électrons). On peut ainsi définir les interactions inter-bandes (d'électron à trou) et intra-bandes (électron à électron ou trou à trou). Le cas qui se rapproche le plus de CeCoIn₅ est l'effet de la résonance en considérant les interactions inter-bandes qui impliquent un changement de signe du gap. Si on se focalise sur les impuretés non-magnétiques, le calcul théorique aboutit à deux résultats importants représentés sur la figure 4.19 :

- l'introduction d'impuretés non-magnétiques entraîne une diminution de T_c tout en gardant Ω_{res} constant. Ainsi le ratio $\frac{\Omega_{res}}{k_B T_c}$ va augmenter.
- les impuretés vont entraîner un élargissement de la résonance.

On peut observer que l'augmentation du ratio $\frac{\Omega_{res}}{k_B T_c}$ est en contradiction avec les résultats de CeCoIn₅. Cette observation nuance l'idée intuitive que l'énergie de la résonance serait toujours proportionnelle à la température critique.

4.8 Conclusion

Les mesures de diffusion de neutrons avec l'introduction d'impuretés magnétiques et non-magnétiques ont permis d'obtenir des résultats pertinents sur la résonance de spin. La présence d'impuretés va provoquer un élargissement de la résonance, ce phénomène a été observé ou prédit théoriquement dans d'autres composés comme YBa₂Cu₃O_{6+x} ou les supraconducteurs au Fer. Nous avons noté également que les impuretés diminuaient l'énergie de la résonance et que cette diminution pouvait être reliée à la suppression du gap supraconducteur par ces mêmes impuretés. L'effet est le même pour des impuretés magnétiques ou non-magnétiques. Cette diminution de Ω_{res} n'est pas commune à tous les supraconducteurs présentant une résonance. Ainsi dans YBa₂Cu₃O_{6+x}, les impuretés non-magnétiques ne changent pas l'énergie de la résonance (expérience de Sidis

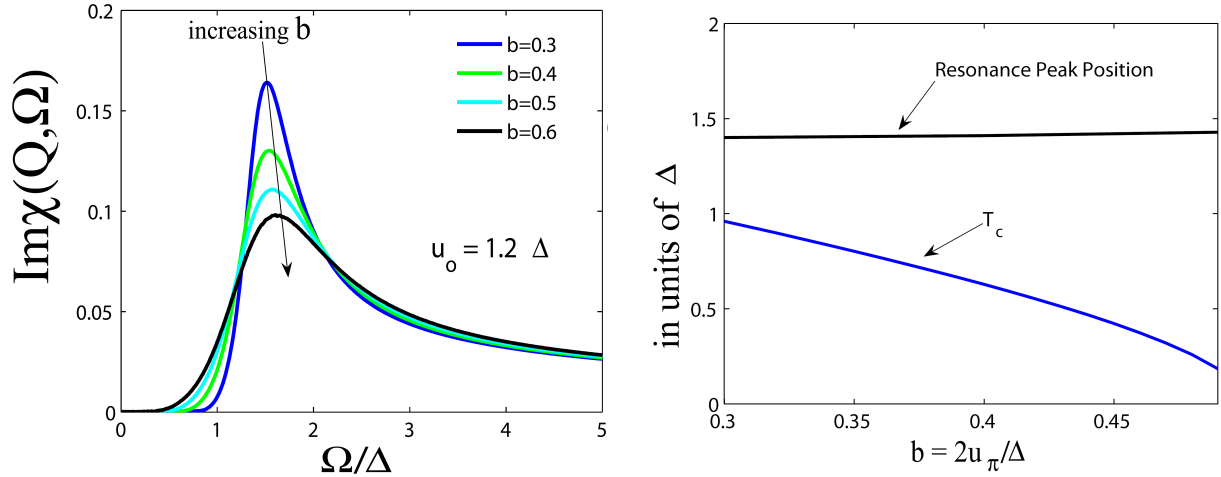


FIGURE 4.19 – **Figure de gauche :** Calcul de $\text{Im}\chi(Q, \Omega)$ pour une diffusion par impuretés non-magnétiques, pour différentes valeurs de densité d'impuretés (b est proportionnel au potentiel de diffusion inter-bandes par les impuretés). **Figure de droite :** Evolution de T_c et du pic de résonance en fonction de b . Extrait de [Maiti 2011].

et al.), de même pour les supraconducteurs au Fer (Théorie de Maiti *et al.*). Ainsi le ratio $\frac{\Omega_{res}}{T_c}$ peut, en fonction, augmenter ou diminuer (comme dans le cas de CeCoIn_5). Nos mesures soutiennent cependant la théorie de l'exciton de spin vu que les prédictions théoriques de Ye Sun et Kazumi Maki [Sun 1995] et Li *et al.* [Li 1998], basées sur ce modèle, sont en adéquation avec nos observations.

L'autre résultat notable de notre étude est le renforcement du signal quasi-élastique à partir d'une substitution de 3.5 %. Il est difficile de trancher quant aux scénarios possibles et une meilleure compréhension du signal magnétique dans la phase non-supraconductrice sera nécessaire pour apporter une réponse définitive.

Chapitre 5

Effets du champ magnétique sur la résonance de spin

5.1 Introduction

Dans cette partie nous allons aborder les expériences de diffusion inélastique de neutrons réalisées sur CeCoIn_5 avec application d'un champ magnétique. L'application d'un champ magnétique permet d'aborder plusieurs problématiques. La première est l'étude de l'évolution de la résonance sous champ. En effet, les études sur la résonance ont jusqu'à l'apparition des supraconducteurs au Fer, été réalisées sur les cuprates de YBCO ou LBCO. Cependant l'échelle d'énergie dans ces matériaux est particulièrement élevée comme nous l'avons déjà précisé dans le chapitre 3. Ainsi puisque l'énergie de la résonance proportionnelle au gap (et donc à T_c) va être de ≈ 60 meV et de même H_{c2} va être particulièrement élevé (supposé $>100\text{T}$ pour $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$).

Ainsi pour tester l'effet d'un champ magnétique, il aurait fallu appliquer des champs particulièrement intenses (>30 T) ce qui n'est pas possible au vu des technologies actuelles (même si des travaux récents laissent supposer une grande avancée dans les prochaines années). Cependant l'arrivée des supraconducteurs au fer qui présentent également une résonance à des énergies moindres a permis de réaliser des expériences pour tester l'évolution de l'excitation sous champ. Les expériences faites ont été menées en même temps que les nôtres et ont abouti à des résultats intéressants dont nous reparlerons à la fin de cette partie.

La deuxième problématique du champ magnétique est liée à la phase ordonnée qui apparaît sous champ à basse température dans CeCoIn_5 . Un des objectifs de cette étude sous champ magnétique était de tester s'il y avait une connexion entre cette phase et la résonance.

5.2 Évolution de la résonance sous champ magnétique

5.2.1 Conditions expérimentales

Dans les deux parties qui suivent vont être présentés les résultats de deux expériences de diffusion inélastique avec application du champ magnétique. Le champ magnétique a été appliqué dans deux directions cristallographiques différentes : $[1,-1,0]$ et $[1,1,1]$ grâce à deux types de cryoaimants : les cryoaimants à champ vertical et à champ horizontal.

L'expérience avec le champ appliqué suivant la direction $[1, -1, 0]$ a été réalisée sur deux spectromètres : IN14 et IN12 avec $k_f = 1.3 \text{ \AA}^{-1}$ et $k_f = 1.2 \text{ \AA}^{-1}$ respectivement. Les collimations sont $60'-0-0$, le monochromateur est en graphite pyrolytique avec focalisation verticale et l'analyseur est focalisant horizontalement (aussi verticalement sur IN14). Un filtre béryllium a été mis avant l'échantillon. Le cryoaimant utilisé sur IN14 permet d'atteindre des champs de 15 T alors que celui d'IN12 a une valeur maximale de 12 T. Les cryoaimants utilisés correspondent à une bobine supraconductrice refroidie par hélium liquide. Les bobines utilisées comportent deux bobines de type Helmholtz permettant faisceau de neutron d'atteindre l'échantillon. Un schéma de

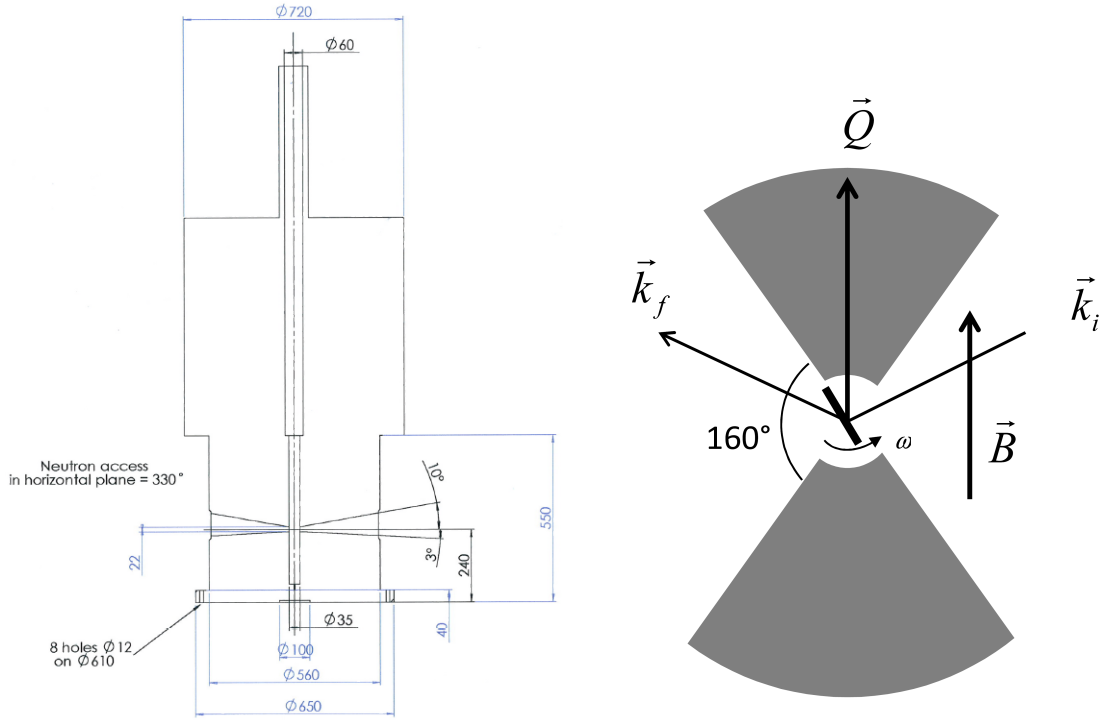


FIGURE 5.1 – A gauche schéma de la bobine 12 T CRG-CEA utilisée pour l’expérience sur IN12. A droite, schéma du cryoaimant horizontal 3.8T utilisé sur IN12.

chacune de ces bobines est montré sur la figure 5.1 et leur implantation sur le spectromètre IN12 est montrée sur la figure 5.2. Dans l’espace entre la partie inférieure et la partie supérieure de la bobine se trouvent les ”piliers” i.e les raccords entre les deux parties de la bobine qui ont une grande section efficace d’absorption de neutron. Les piliers qui couvrent une surface restreinte pour un cryoaimant vertical ne posent pas de contraintes pour le choix du vecteur \vec{Q} .

L’autre expérience faite avec le champ suivant $[1,1,1]$ a été réalisée sur IN12 dans les mêmes conditions que l’expérience précédente. La différence est l’utilisation d’un cryoaimant à champ horizontal. Un cryoaimant à champ horizontal contrairement aux cryoaimants à champ vertical pose plusieurs contraintes. Tout d’abord la valeur maximale du champ est plus faible et vaut dans notre cas 3.8 T. Ensuite afin d’éviter les piliers de la bobine, il faut que le vecteur \vec{Q} soit parallèle à la direction du champ sinon les piliers de la bobine vont intercepter le faisceau de neutron. Cette contrainte nous a donc obligé à faire une mesure avec le champ suivant $[1,1,1]$ (parallèle à $[\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2}]$). Il aurait été intéressant mais hélas impossible de faire la mesure avec un champ appliqué suivant $[0,0,1]$ perpendiculaire au plan basal. L’environnement échantillon était dans les deux expériences un insert à dilution afin d’atteindre les basses températures. Le bruit de fond dans chacune des expériences a été déterminé de la même manière que précédemment, c’est-à-dire en faisant un scan en énergie décalé en \vec{Q} . Pour le champ suivant $[1,-1,0]$, le vecteur \vec{Q} est $(0.2, 0.2, \frac{1}{2})$; et pour le champ suivant $[1,1,1]$, $\vec{Q} = (0.425, 0.425, 0.8)$ vu que les piliers du cryoaimant horizontal limitent le choix du vecteur \vec{Q} .

5.2.2 Champ magnétique appliqué suivant la direction $[1,-1,0]$

Dans cette première expérience nous avons appliqué le champ magnétique dans le plan de base de la structure cristallographique. La direction choisie est nommée $[1,-1,0]$ car le plan de diffusion retenu pour orienter le cristal est celui défini par les directions $[1,1,0]$ et $[0,0,1]$. Le cryoaimant utilisé pour l’expérience peut atteindre des champs de 12T. H_{c2} valant 12.3 T dans $CeCoIn_5$, la bobine est parfaitement adaptée à l’expérience. L’objectif était d’étudier l’évolution de la résonance avec l’application d’un champ. La résolution mesurée sur l’incohérent à partir de la largeur à mi-hauteur est de 0.1 meV. Le volume d’échantillon est d’environ 100 mm³. Sur la figure 5.3 sont présentés des spectres en énergie à \vec{Q} constant à différents champs i.e avec $H=0$, 2 et 4 T à

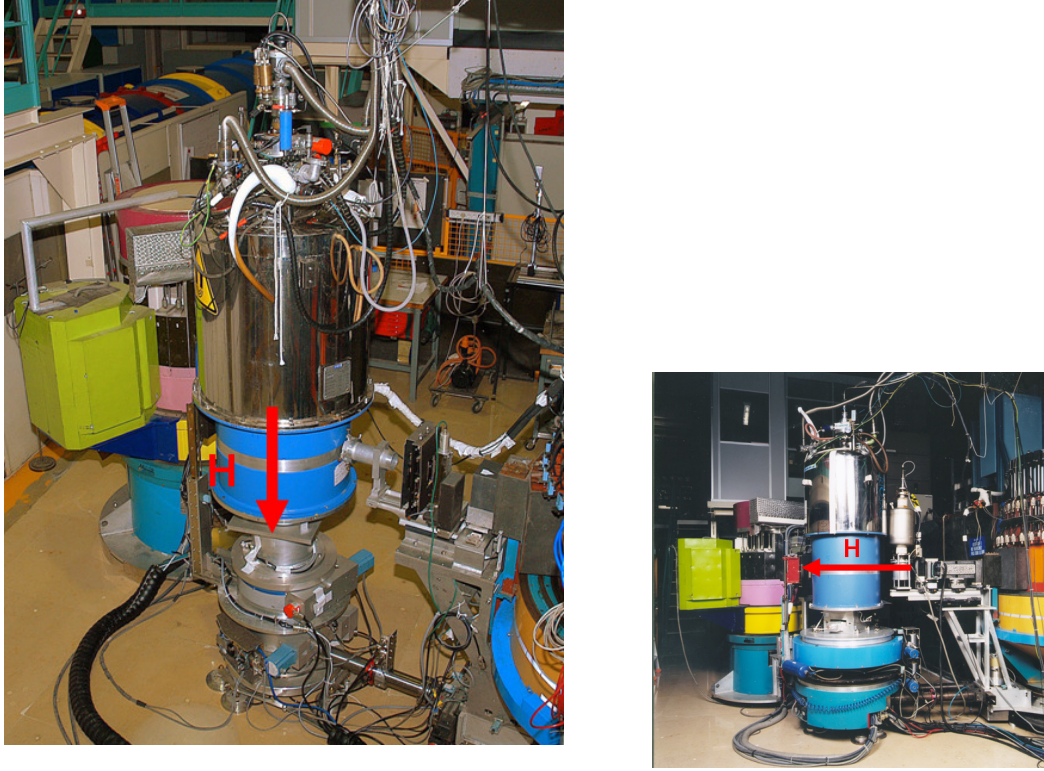


FIGURE 5.2 – La figure de gauche est une image d'un cryoaimant à champ vertical et celle de droite correspond à un cryoaimant à champ horizontal tous les deux installés sur IN12 à l'ILL. La flèche rouge indique la direction du champ.

une température de 80 mK. La température est très inférieure à T_c y compris en tenant compte la diminution de T_c induit par l'application du champ magnétique (Ainsi avec un champ de 4 T, la température critique va descendre à 2 K). Le bruit de fond a été déterminé par un spectre en énergie en $\mathbf{Q}=(0.2,0.2,\frac{1}{2})$ à $T=80$ mK et $H=0$ T. Nous avons utilisé pour traiter les spectres en énergie la même formule de la "Lorentzienne inélastique" présentée dans le chapitre 4. Ainsi les paramètres sont toujours l'intensité χ' , la largeur Γ et la position en énergie du pic Ω_{res} . L'évolution de chacun des paramètres est présentée sur la figure 5.4. Comme l'intensité n'a pas été normalisée, elle est donnée en unité arbitraire. Dans les barres d'erreurs, l'intensité reste constante avec l'augmentation du champ magnétique alors que Γ et Ω_{res} évoluent.

- Pour un champ nul, la résonance est observée à 0.55 meV et l'on peut constater que le pic se déplace vers les basses-énergie avec l'application du champ. Ω_{res} diminue avec une pente de -0.039 meV/T.
- La largeur augmente de manière régulière avec l'application du champ magnétique. On peut constater une anomalie à 2.5 T avec une très forte augmentation de la largeur.

On peut noter qu'aucune donnée n'est présentée pour des valeurs de champ supérieur à 5 T. En effet, à partir de 5 T, la résonance est devenue suffisamment large et a atteint une valeur tellement basse en énergie qu'il est impossible de séparer le signal inélastique du signal incohérent. Des spectres en fonction de \mathbf{Q} ont été également collectés et sont montrés sur la figure 5.5. Les spectres ont été mesurés à énergie constante à champ nul et à $H=4$ T dans les directions $[H,H,\frac{1}{2}]$ et $[\frac{1}{2},\frac{1}{2},L]$. On peut constater que la résonance reste centrée sur $\mathbf{Q}=(\frac{1}{2},\frac{1}{2},\frac{1}{2})$ avec l'application du champ. Les longueurs de corrélations, respectivement de $\xi_a = 12.2 \pm 0.7 \text{ \AA}$ et $\xi_c = 10.0 \pm 0.5 \text{ \AA}$ n'évoluent pas sous champ aux barres d'erreurs près. Si on compare ces longueurs avec la longueur de cohérence supraconductrice de 30 \AA ([Knebel 2008]) et du réseau de vortex de 200 \AA à 5 T, on peut constater que les longueurs de corrélations de la résonance sont très inférieures.

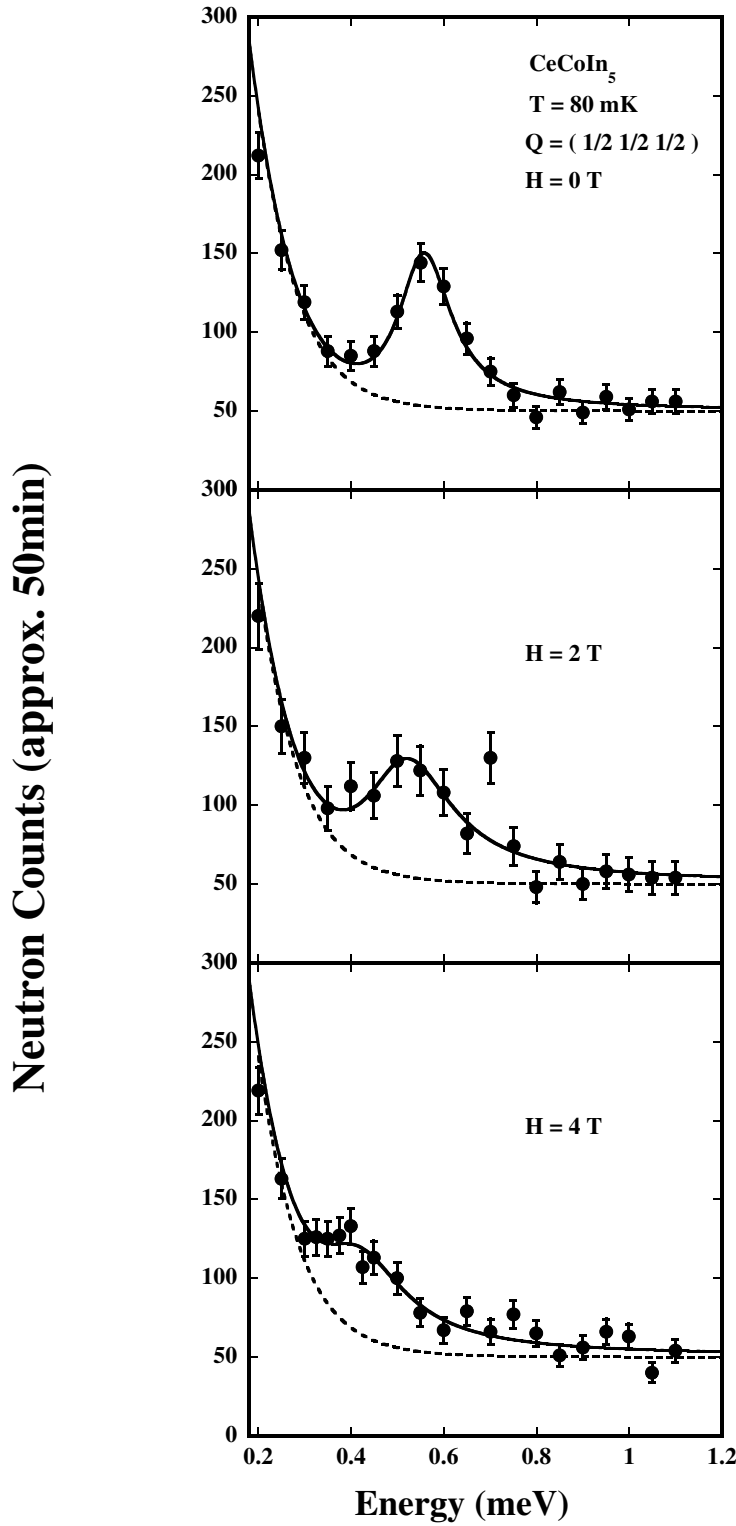


FIGURE 5.3 – Spectre en énergie à \mathbf{Q} constant $=(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ à des champs de $H=0, 2$ et 4 T à 80 mK. Les traits pleins sont des fits tels que décrits dans le texte, les traits pointillés correspondent au bruit de fond.

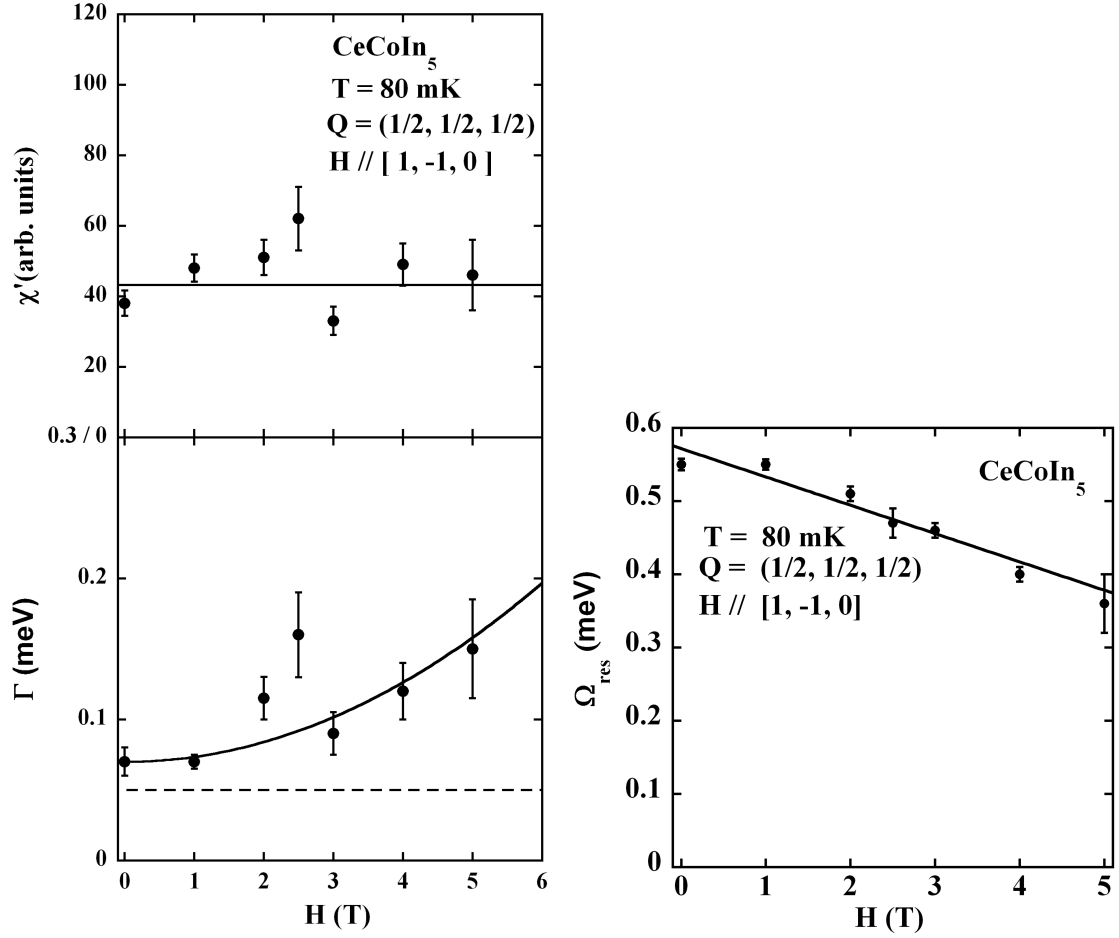


FIGURE 5.4 – La figure de gauche correspond à la dépendance de χ' et Γ en fonction du champ magnétique mesurée à \mathbf{Q} constant $=(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$. Les lignes pleines correspondent à des guides pour les yeux. La ligne pointillée indique la mi-largeur à mi-hauteur du signal incohérent. La figure de droite montre l'évolution de Ω_{res} en fonction du champ magnétique mesurée à \mathbf{Q} constant $=(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$. La ligne pleine correspond à un fit linéaire.

5.2.3 Conclusion des mesures en champ vertical

Les spectres collectés en champ aboutissent à plusieurs remarques :

- L'énergie de la résonance diminue avec l'application du champ magnétique. Aucun splitting du mode n'est clairement observé mais l'augmentation de la largeur du pic pour des faibles valeurs de champ et l'anomalie à 2.5 T pourraient indiquer un possible splitting Zeeman.
- La résonance reste centrée en $\mathbf{Q}=(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ et les longueurs de corrélations ne sont pas affectées par l'application d'un champ magnétique.

5.3 Champ magnétique appliquée suivant la direction [1,1,1]

Après avoir suivi l'évolution de la résonance avec un champ appliqué suivant le plan basal, une question important était l'évolution de la résonance avec un champ magnétique appliqué suivant l'axe- c . En effet, le champ critique H_{c2} présente une anisotropie d'un facteur 2 entre sa valeur dans le plan (pour rappel, $H_{c2plan} = 11.8$ T et suivant l'axe- c $H_{c2\perp} = 5.2$ T). Suite aux contraintes expérimentales exposées précédemment, le champ a été appliqué suivant la direction [1,1,1] au lieu de [0,0,1].

La résolution mesurée à partir de l'incohérent est de 0.1 meV. L'analyse des données est la même que celle utilisée précédemment. La figure 5.6 montre des spectres collectés à des champs de 0 T, 1 T et 2 T. La position du pic diminue avec l'application du champ pendant que la largeur augmente. On retrouve donc le

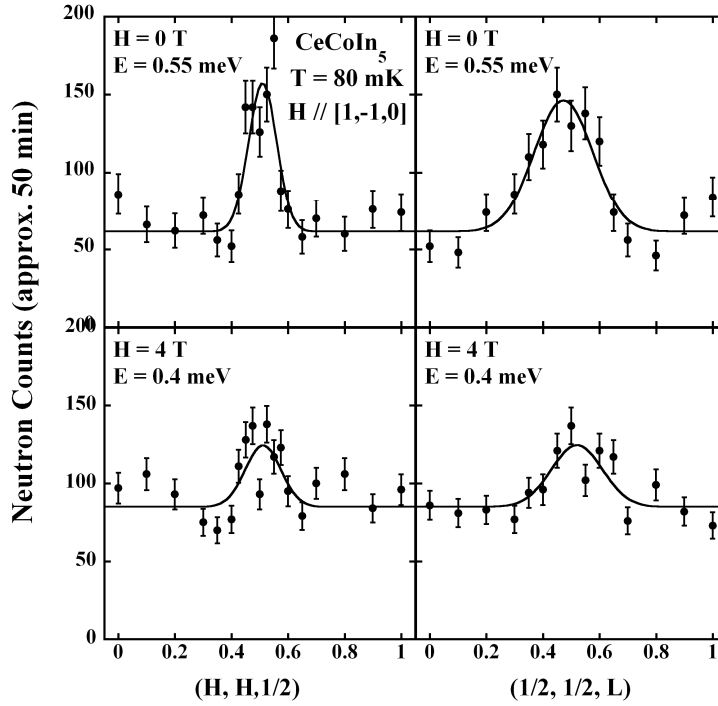


FIGURE 5.5 – Spectres à énergie constante $E=0.55$ meV mesurés suivant la direction $[H, H, \frac{1}{2}]$ et $[\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, L]$ pour des champs de $H=0$ T (panneaux supérieurs) et 4 T (panneaux inférieurs). Les lignes sont des fits Gaussien.

même comportement que celui observé avec le champ dans le plan basal. La résonance ne peut pas être séparée de l'incohérent à partir d'un champ de 2.5 T.

Sur la figure 5.7 est présentée l'évolution de Ω_{res} et de la largeur Γ en fonction du champ appliqué dans les deux directions $[1,-1,0]$ et $[1,1,1]$. Nous pouvons constater que :

- L'évolution de l'énergie de la résonance est semblable dans les deux directions avec une pente de $\alpha = -0.039 \pm 0.002$ meV/T. Et ce, malgré une diminution du champ critique H_{c2} entre les deux directions : H_{c2} passe en effet de 12.3 T pour $[1,-1,0]$ à 9 T pour $[1,1,1]$.
- La largeur semble augmenter plus rapidement avec un champ ayant un composante suivant l'axe c . Cela pourrait expliquer pourquoi la résonance n'est plus observable à partir de 2.5 T alors que son énergie à la même évolution que pour $H// [1,-1,0]$. En effet, avec le champ dans le plan, la résonance était résolue jusqu'à 5 T.
- Comme pour le champ suivant le plan basal, aucun splitting Zeeman de l'excitation n'est observé.

5.4 Mesure dans la phase LTHF

Dans une dernière expérience, nous avons fait une mesure de diffusion inélastique dans la phase LTHF. Les objectifs de cette mesure étaient d'observer le pic élastique vu par Kenzelmann [Kenzelmann 2008] puis d'étudier la dynamique de spin dans cette phase. L'expérience a été réalisée sur IN14 avec le même montage que celui utilisé lors des précédentes expériences.

Sur la figure 5.8 sont présentés les résultats de nos mesures élastiques dans la phase LTFH. Le pic élastique que nous observons est comparable à celui mesuré Kenzelmann *et al.* avec une évolution de l'intensité en champ très semblable. Cependant notre montage induit une grande largeur angulaire du pic. En effet, nous retrouvons la mosaïcité du montage qui est de environ 1° . Ces résultats sont une première étape importante car les expériences de Kenzelmann *et al.* ont été réalisés grâce à un seul monocristal alors que notre montage

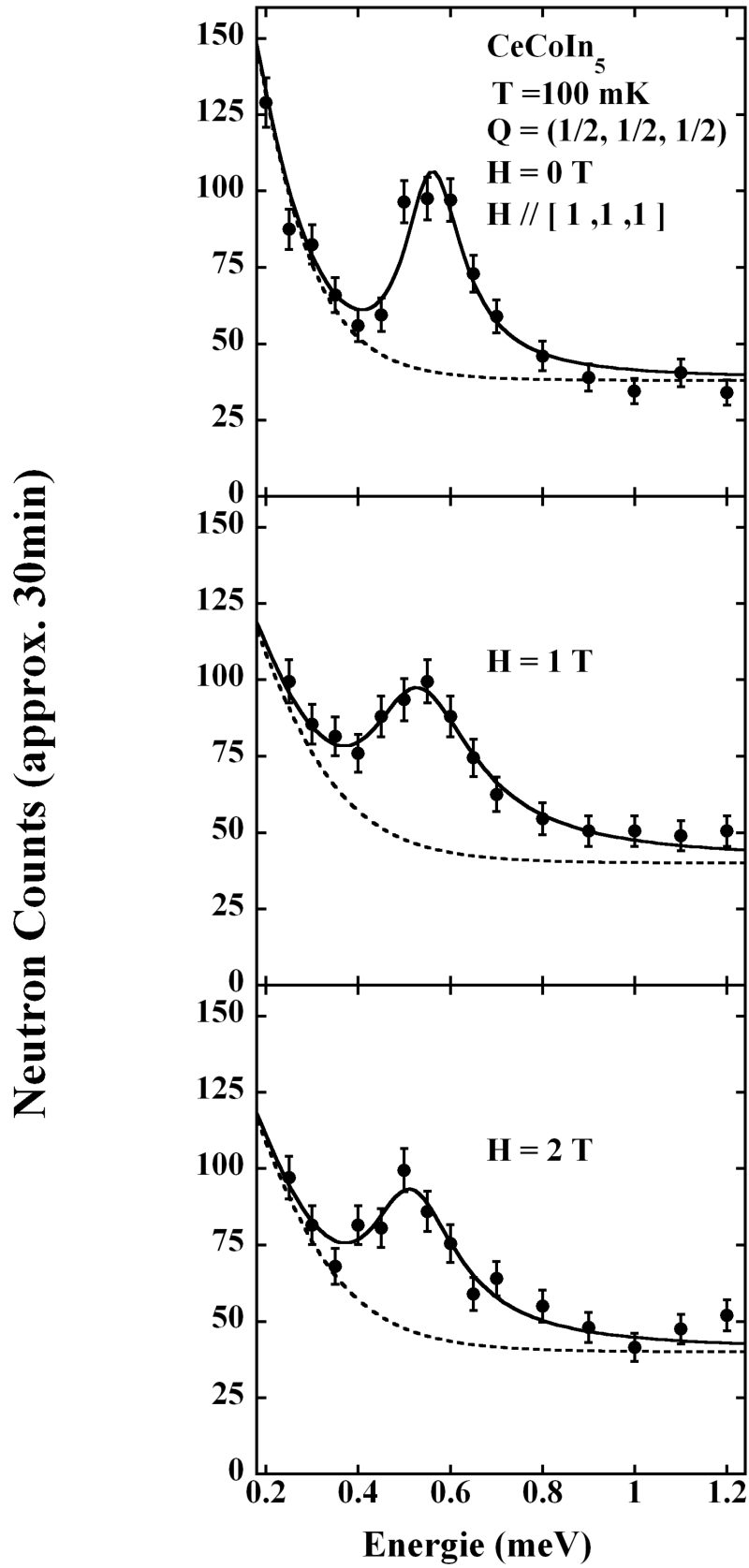


FIGURE 5.6 – Spectre en énergie à \mathbf{Q} constant $=(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ à des champs de $H=0, 1$ et 2 T à 100 mK. Les traits pleins sont des fits tels que décrits dans le texte, les traits pointillés correspondent au bruit de fond.

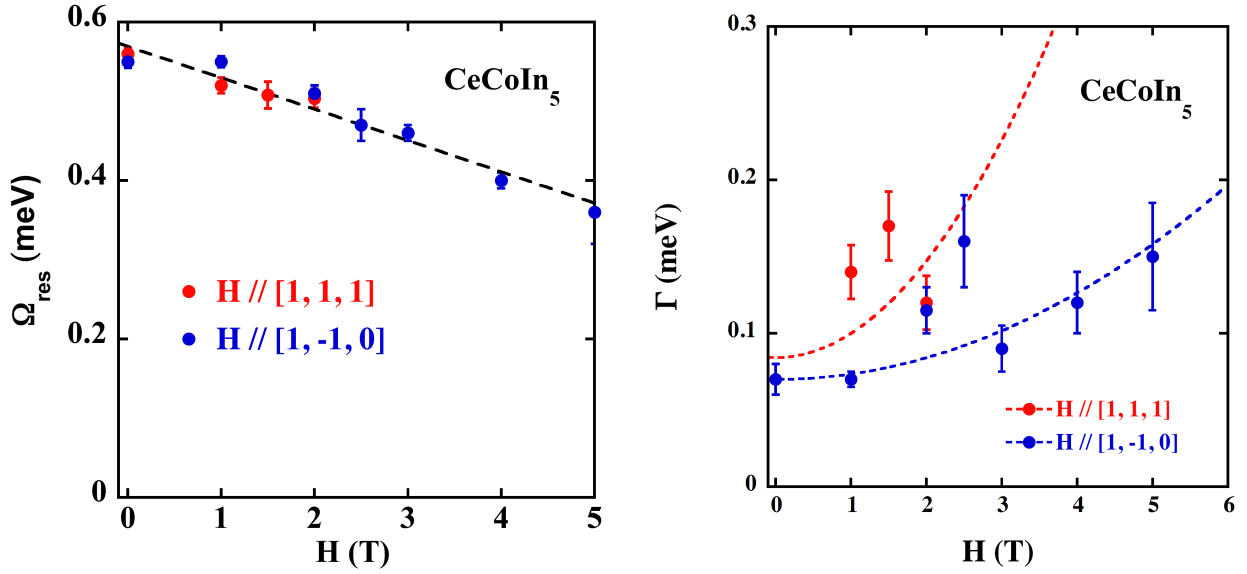


FIGURE 5.7 – **Figure de gauche :** Évolution de l'énergie de la résonance Ω_{res} en fonction du champ magnétique appliqué dans deux directions différentes : $[1, -1, 0]$ et $[1, 1, 1]$. Le trait pointillé correspond à un fit linéaire. **Figure de droite :** Dépendance de la largeur du pic de résonance Γ en fonction du champ magnétique appliqué dans deux directions différentes : $[1, -1, 0]$ et $[1, 1, 1]$. Les traits pleins et pointillés sont des guides pour les yeux

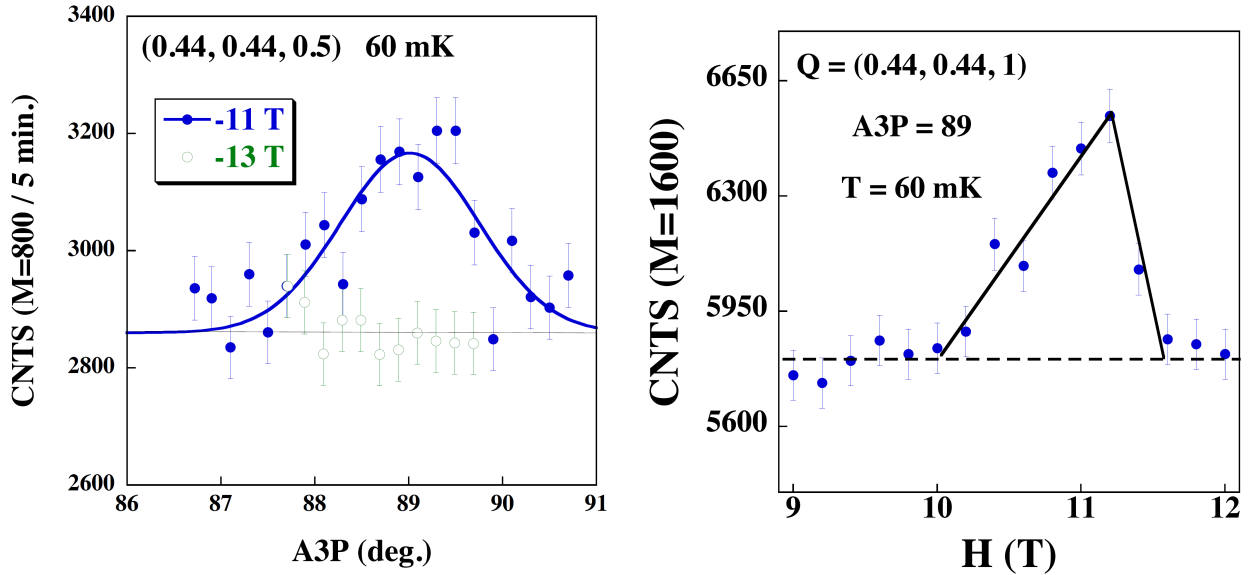


FIGURE 5.8 – **Figure de gauche :** Scans rotationnels (rotation du porte-échantillon) du pic de Bragg incommensurable à 11 T et 13 T pour une température de 60 mK. Les traits sont des guides pour les yeux. **Figure de droite :** Dépendance en champ magnétique de l'intensité maximum du pic incommensurable. Les traits pleins et pointillés sont des guides pour les yeux.

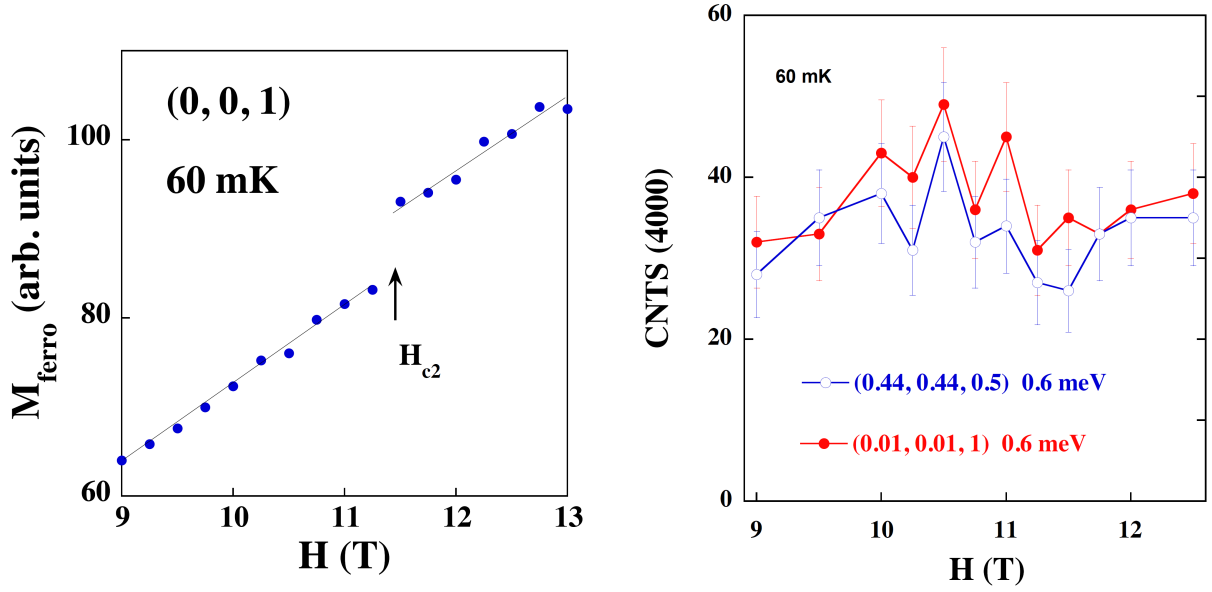


FIGURE 5.9 – **Figure de gauche** : Dépendance du moment ferromagnétique en fonction du champ magnétique. On peut noter que le moment augmente linéairement avec le champ, sans transition lorsque qu'on entre dans la phase LTHF et par contre présente une discontinuité à H_{c2} . **Figure de droite** : Evolution en champ magnétique de l'intensité neutronique à la position incommensurable et ferromagnétique pour une énergie de 0.6 meV.

en inclut environ 50. Il était donc possible que la phase LTHF ne soit pas observable à cause de la trop grande mosaïcité de l'ensemble et à cause de d'éventuels problèmes de thermalisation inhérents à notre montage.

Dans une deuxième partie, nous avons étudié l'évolution en champ magnétique du moment magnétique à la position de Bragg ferromagnétique (0,0,1) de CeCoIn₅ aux alentours de la phase LTFH (i.e avant, pendant et après la phase), présenté sur le panneau de gauche de la figure 5.9. On peut constater que le moment augmente linéairement avec le champ appliqué, comme attendu. Le moment magnétique ne montre aucune discontinuité lorsque la phase LTFH apparaît mais en présente une au champ critique H_{c2} en accord avec les mesures d'aimantation [Tayama 2002]. Enfin, nous avons essayé d'étudier la dynamique de spin autour de la position incommensurable et ferromagnétique. Nos mesures n'ont révélé aucune évolution de la dynamique avec l'application du champ magnétique dans une gamme d'énergie de 0.6 à 1.4 meV. Un résultat typique pour un spectre à 0.6 meV est montré sur le panneau de droite de la figure 5.9. Ces mesures ne sont que préliminaires et demandent à être répétées. La présence d'un pic parasite n'a pas permis d'étudier la dynamique à plus basse énergie.

5.5 Discussion

5.5.1 Comparaison entre le champ suivant [1,-1,0] et [1,1,1]

Dans la partie précédente, on a pu constater que l'évolution de Ω_{res} est semblable pour les deux directions de champ magnétique choisies. Cependant CeCoIn₅ n'est pas un matériau isotrope surtout pour les propriétés magnétiques. Cette anisotropie est importante à aborder pour pouvoir comparer les deux directions du champs. La résonance étant liée à la supraconductivité mais étant aussi une excitation magnétique, sa réponse en fonction du champ doit être mise en relief avec la susceptibilité magnétique et la valeur du champ critique H_{c2} .

- Ainsi avec un écart de 23° (angle entre la direction [1 -1 0] et [1 1 1]) par rapport au plan basal, le champ critique H_{c2} passe de 11.8 T à 9 T [Correa 2007]. On a donc une diminution du champ critique d'environ 24%. Pour rappel, le champ critique suivant l'axe-*c* vaut 5.2 T.

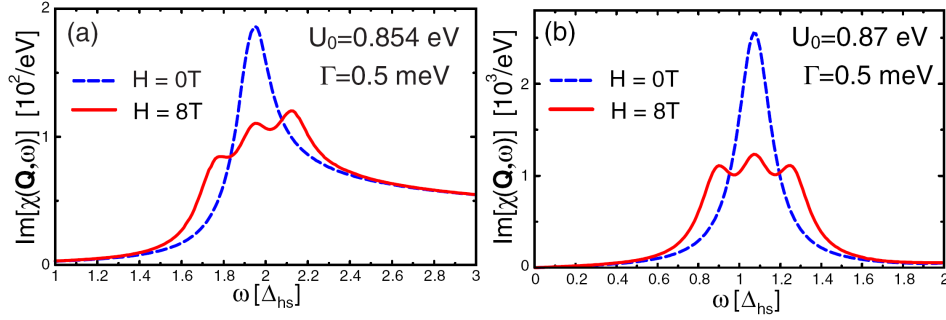


FIGURE 5.10 – Calcul de $\text{Im}\chi(\mathbf{Q}, \omega)$ pour le cuprate dopé en électrons $\text{Pr}_{0.88}\text{LaCe}_{0.12}\text{CuO}_{4-\delta}$ avec $H = 0\text{ T}$ (courbe en bleu) et $H = 8\text{ T}$ (courbe en rouge) à $T = 2\text{ K}$. **Figure de gauche :** La résonance de spin est proche du continuum électron-trou. **Figure de droite :** La résonance de spin est loin du continuum. Extrait de [Ismer 2007]

- La susceptibilité dans CeCoIn_5 est anisotrope avec un facteur 2 à basse température en faveur de celle suivant l'axe- c par rapport au plan basal de la structure.

Ainsi l'axe- c correspond au maximum de susceptibilité et également au minimum de H_{c2} . Aussi nous nous attendions à ce que le mode décroisse plus vite en énergie lorsque le champ est suivant $[1,1,1]$. La non-évolution de la pente de Ω_{res} pour différentes directions du champ appliqué semble donc indiquer que la résonance n'est pas dépendante des propriétés magnétiques macroscopiques. De plus, de récentes études de RMN ont montré que la susceptibilité alternée au vecteur antiferromagnétique aurait une anisotropie inversée par rapport à la susceptibilité macroscopique [Sakai 2010]. Mais encore une fois si la résonance était liée à la susceptibilité, il devrait y avoir un changement d'évolution avec l'orientation du champ.

Il semble donc que l'effet de l'orientation du champ sur la résonance reste encore mal compris et d'autres expériences de diffusion de neutrons devront être réalisées afin d'éclaircir les rapports entre l'évolution sous champ de la résonance et les propriétés magnétiques du matériau.

5.5.2 Dégénérescence de la résonance et splitting sous champ

La nature de la résonance reste un "hot-topic" alors que la découverte d'une telle excitation remonte à 1991 comme nous l'avons présenté précédemment. Une étude de Eschrig *et al.* qui ne tient compte que de l'effet orbital a montré que l'énergie de la résonance diminue et que la forme de la résonance s'élargit sous champ [Eschrig 2001]. Une autre étude par Ismer *et al.* basée uniquement sur l'effet Zeeman met en évidence un splitting de la résonance [Ismer 2007] (voir Fig. 5.10). Ces deux études ont été développées pour les cuprates. Le cas de la résonance dans CeCoIn_5 est toujours très discuté théoriquement. Nous présenterons par la suite une de ces études réalisées par Michal et Mineev concernant l'évolution sous champ de la résonance de spin.

En ce qui concerne nos mesures expérimentales plusieurs faits supportent l'idée d'un splitting de l'excitation.

- Tout d'abord, on constate un très fort élargissement du pic de résonance à bas champ, particulièrement vers 2.5 T pour $H//[1,-1,0]$. Cette augmentation anormale pourrait provenir d'un splitting du pic de résonance mais l'écart entre les pics ne serait pas assez important pour les résoudre.
- Une expérience préliminaire réalisée sur IN14 a montré un possible deuxième pic qui apparaissait sous champ à plus haute énergie. Ce spectre est présenté sur la Fig. 5.11 : à 4 T on observe deux pics à 0.4 et 0.8 meV . Cependant une étude approfondie sur IN12 n'a pas permis de reproduire le résultat.
- Le dernier argument pour un splitting de l'excitation n'a pas été encore publié mais présenté à plusieurs conférences internationales. Il s'agit de mesures à très grande résolution et à haut flux réalisées sur le spectromètre OSIRIS à ISIS par Chris Stock qui confirme l'existence de deux pics à 3 T .

Les arguments pour un possible splitting de l'exciton de spin $S = 1$ présentent donc plusieurs défauts mais il faut cependant nuancer notre propos. En effet même si l'excitation est un triplet, il est possible d'observer uniquement deux branches et non trois. S'il y a une anisotropie dans le composé alors le mode constant en

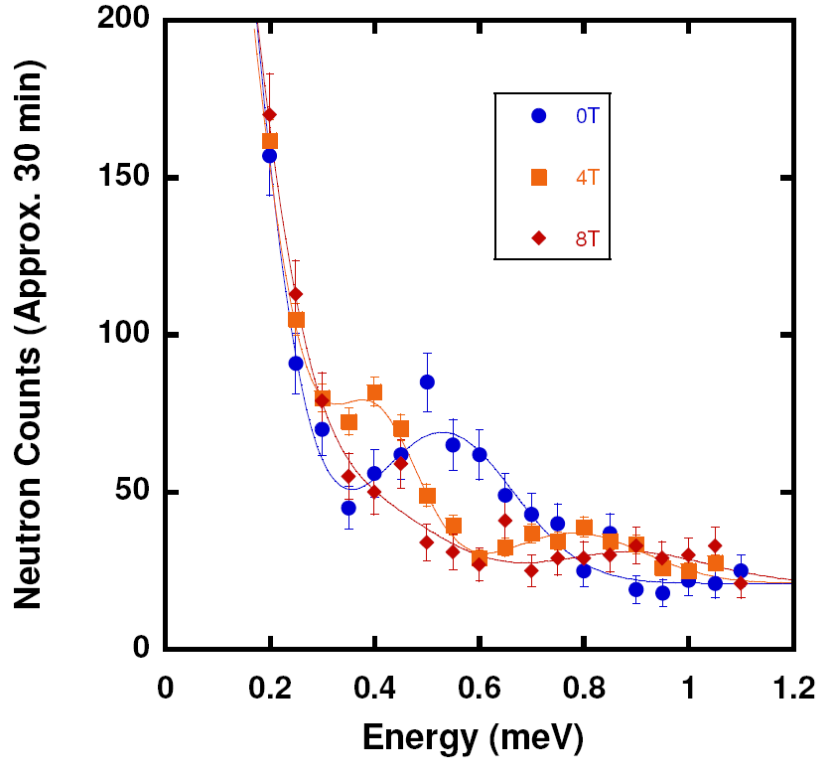


FIGURE 5.11 – Spectre en énergie à \mathbf{Q} constant $= (\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ à des champs de $H = 0, 4$ et 8 T. Les traits pleins sont des fits Lorentzien

champ aura une énergie différente en fonction de la direction du champ appliqué. S'il est suivant l'axe de facile aimantation alors son énergie sera réduite et de même si le champ est suivant de l'axe de difficile aimantation alors son énergie sera augmenté (voir la figure 5.12 pour un schéma explicatif). On se réfère ici à une anisotropie à un ion (de type $D\hat{S}_z^2$) et aux résultats obtenus sur les excitations triplet dans les système de Haldane comme le composé NENP [Regnault 1994].

Ainsi vu que CeCoIn_5 est anisotrope, il est possible que l'on ne puisse observer que deux branches d'excitation et qu'il soit impossible de distinguer une excitation triplet d'une excitation doublet. En effet dans les deux cas (b) et (c) de la figure 5.12, la difficulté serait d'observer soit un mode à basse énergie noyé dans l'incohérent soit un mode à haute-énergie très amorti par les interactions avec le continuum électron-trou.

Ainsi on peut conclure que si nos mesures ne mettent en évidence qu'un seul pic, plusieurs faits soutiennent l'idée d'une excitation doublet (et donc peut-être triplet). Le moyen le plus efficace pour confirmer la dégénérescence de la résonance serait l'utilisation de neutrons polarisés qui grâce à la différence de polarisation de chacun des modes permet de les observer dans des canaux différents de mesures. Cette méthode présentée dans [Lorenzo 2007] permettrait de confirmer si la résonance de spin est un singulet ou un niveau dégénéré.

A titre de comparaison avec d'autres composés présentant des résonances étudiées sous champ, on peut citer les travaux de Li *et al.* [Li 2011] qui ont mesuré l'effet du champ magnétique sur les composés $\text{BaFe}_{1.9}\text{Ni}_{0.1}\text{As}_2$ et $\text{FeSe}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$ qui présente aussi une résonance à une énergie de respectivement $\Omega_{res} = 6.9$ meV et $\Omega_{res} = 6.5$ meV. De ces mesures est conclu que la résonance dans $\text{BaFe}_{1.9}\text{Ni}_{0.1}\text{As}_2$ s'apparente plus à une transition singulet-doublet et qu'aucune affirmation ne peut-être donnée pour $\text{FeSe}_{0.4}\text{Te}_{0.6}$ quoique les mesures orienteraient plus vers le scénario du triplet.

Dans les cuprates, l'application d'un champ magnétique n'a pas d'effet sur la position de la résonance mais un effet notable est mesuré sur la largeur et l'intensité du pic, particulièrement quand le champ est appliqué perpendiculairement aux plan CuO_2 [?] [Dai 2000].

On peut donc conclure que la détermination de la nature de la résonance par l'application un champ magnétique reste difficile, l'excitation étant à une échelle d'énergie très élevées pour les cuprates, ou les données

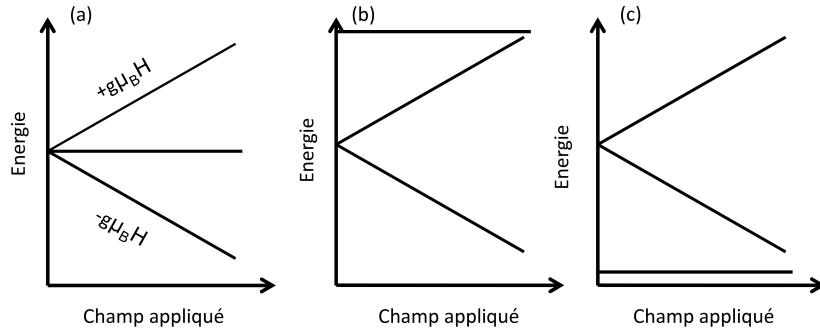


FIGURE 5.12 – Schémas de l'effet Zeeman sur un état triplet : (a) sans anisotropie . (b) avec une anisotropie à un ion (de type $D\hat{S}_z^2$) et le champ suivant l'axe de difficile aimantation (c) avec une anisotropie à un ion et le champ suivant l'axe de facile aimantation

étant difficiles à analyser dans le cas des supraconducteurs au fer ou CeCoIn_5 .

5.5.3 Étude de la pente de Ω_{res}

Le mode observé dans les mesures sous champ magnétique diminue avec une pente de $\alpha = -0.039 \pm 0.002$ meV/T. Pour expliquer la valeur de la pente, nous avons calculé le moment (para)magnétique de l'état fondamental de CeCoIn_5 à partir de la fonction d'onde déterminée par des expériences de rayon-X et de neutrons [Willers 2010] ($|0\rangle = 0.36|\pm 5/2\rangle + 0.93|\mp 3/2\rangle$) :

- $\mu_{\parallel} = 0.83 \mu_B$ (suivant axe-c)
- $\mu_{\perp} = 0.64 \mu_B$ (dans le plan)¹

Sachant que $1\mu_B \times 1T \approx 0.058$ meV, on peut constater que le moment magnétique dans le plan μ_{perp} aboutirait à une pente de $\alpha = 0.64 \times 0.058 \approx 0.037$ meV/T. Cette valeur est très proche de celle mesurée expérimentalement et pourrait indiquer que le mode de résonance observé porte le moment magnétique du doublet fondamental du champ cristallin.

Nos précédentes conclusions avaient déjà remis en doute la pertinence du modèle de l'exciton $S=1$ pour la résonance dans CeCoIn_5 et cette observation va dans ce sens. Par contre, ce résultat implique aussi que nous observons un effet Zeeman sur le moment magnétique des électrons localisés $4f$. Or la résonance est liée aux paires de Cooper que l'on suppose délocalisées dans le matériau. Aussi il est étonnant d'obtenir un moment lié à des électrons localisés. On peut cependant noter que l'importance des électrons localisés dans CeCoIn_5 avait déjà été mise en avant dans les travaux de Nakatsuji *et al.* [Nakatsuji 2004] et ceux de Flint *et al.* [Flint 2010].

Il faut noter qu'il reste des incohérences dans les observations précédentes. En effet, si le moment magnétique est celui du doublet fondamental alors la pente devrait augmenter quand le champ magnétique est appliqué suivant $[1,1,1]$ par rapport à $[1,-1,0]$, puisque μ_z est supérieur à μ_{perp} . Or on a pu constater qu'aucune différence n'est observée entre les deux directions. Ainsi un autre élément doit intervenir pour expliquer la dépendance de Ω_{res} en fonction de l'orientation du champ. Nos mesures ont donc mis en évidence que la diminution de la résonance sous champ semble être liée au moment magnétique du doublet fondamental de champ cristallin.

5.5.4 Comparaison de l'évolution de Ω_{res} en fonction de $T_c(H)$

Dans la partie sur les impuretés, nous avons comparé l'évolution de Ω_{res} et celle de T_c en fonction du taux de substitution. Cependant si l'on souhaite faire la même comparaison avec l'application du champ magnétique, la situation est plus complexe. En effet avec les impuretés magnétique ou non-magnétique, comme nous avons vu que $\Omega_{res} \propto T_c$, par contre avec l'application d'un champ magnétique, le rapport entre Ω_{res} et T_c est difficile à connaître. En effet, T_c va être diminué par le champ magnétique à la fois par l'effet paramagnétique et par l'effet orbital. De même, l'évolution en champ de Ω_{res} va également différer suivant que l'effet orbital ou

1. le calcul des moments magnétiques à partir de l'état fondamental est explicité dans l'annexe 1.

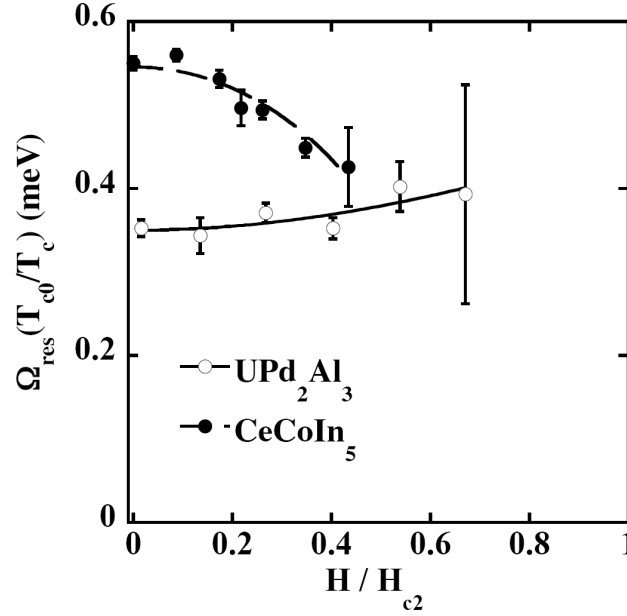


FIGURE 5.13 – $\Omega_{res} \times \frac{T_{c0}}{T_c}$ en fonction de $\frac{H}{H_{c2}}$ avec pour $CeCoIn_5$ $H // [1 -1 0]$ et pour UPd_2Al_3 $H // b$

Zeeman est dominant. Le traitement de l'effet Zeeman réalisé par Michal *et al.* [Michal 2011b] conclut à un splitting de l'excitation. On a donc de multiples possibilités d'évolution en champ magnétique pour l'une et l'autre des quantités.

Cependant tracer ce rapport peut-être intéressant si l'on souhaite comparer deux composés différents, et notamment comparer $CeCoIn_5$ avec UPd_2Al_3 , le seul composé fermion lourd dont l'étude de la résonance en champ magnétique a été faite. Ainsi sur la Fig. 5.13 est représenté $\Omega_{res} \times \frac{T_{c0}}{T_c}$ (T_{c0} est T_c pour $H = 0$ T) en fonction de $\frac{H}{H_{c2}}$ pour $CeCoIn_5$ ($H // [1, -1, 0]$) et UPd_2Al_3 ($H // b$). On peut noter que pour $CeCoIn_5$, la quantité diminue et atteint peut-être zéro pour $H = H_{c2}$. Mais pour UPd_2Al_3 , $\Omega_{res} \times \frac{T_{c0}}{T_c}$ reste constant avec l'application du champ magnétique, signifiant que $\Omega_{res} \propto T_c(H)$. Or puisque l'effet orbital et paramagnétique sont présents dans UPd_2Al_3 , il est difficile de trancher sur la responsabilité de l'un ou l'autre des effets pour expliquer cette évolution. De plus, il faut rappeler également que la phase supraconductrice de UPd_2Al_3 apparaît au sein d'une phase antiferromagnétique compliquant d'autant plus l'explication de l'effet du champ.

Une possible interprétation que nous suggérons est qu'il y aurait peut-être un lien avec la proximité ou non d'une phase antiferromagnétique induite sous champ. En effet, quand l'application du champ magnétique n'aboutit pas à l'apparition d'une phase magnétique (comme dans UPd_2Al_3 [Blackburn 2006] ou $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_4$ [Motoyama 2006]), $\Omega_{res}(H) \propto T_c(H)$. Et, au contraire, lorsque le champ magnétique induit l'apparition d'une phase magnétique ($CeCoIn_5$, $La_{1.855}Sr_{0.145}CuO_4$), $\Omega_{res}(H)$ décroît beaucoup plus vite que $T_c(H)$ et constituerait le mode mou associé à l'ordre.

5.5.5 Résonance de spin et la phase LTHF

Comme introduit précédemment, le mode de résonance observé diminue sous champ et pour une extrapolation linéaire, doit s'annuler à $H \approx 14$ T. Cette valeur est proche de H_{c2} (≈ 12.3 T) et puisque la résonance est liée à la supraconductivité, il semble logique de supposer que Ω_{res} s'annule à la transition.

Cependant une autre possibilité serait que la résonance s'annule à H_{LTHF} , c'est-à-dire au moment où la phase LTHF apparaît. Le fait qu'une excitation magnétique qui s'annule sous champ aboutisse à un ordre magnétique a déjà été observé dans de nombreux composés comme les systèmes isolant avec gap de spin tel $TiCuCl_3$ [Ruegg 2003] ou les systèmes métalliques proches de $CeCoIn_5$ comme $La_{1.845}Sr_{0.145}CuO_4$ [Chang 2009]. Dans le cas de $TiCuCl_3$, on a un triplet qui se splitte sous champ avec un mode qui va à énergie nulle. Pour $La_{1.845}Sr_{0.145}CuO_4$, on a un signal magnétique qui présente un gap dans la phase supraconductrice. Ce gap

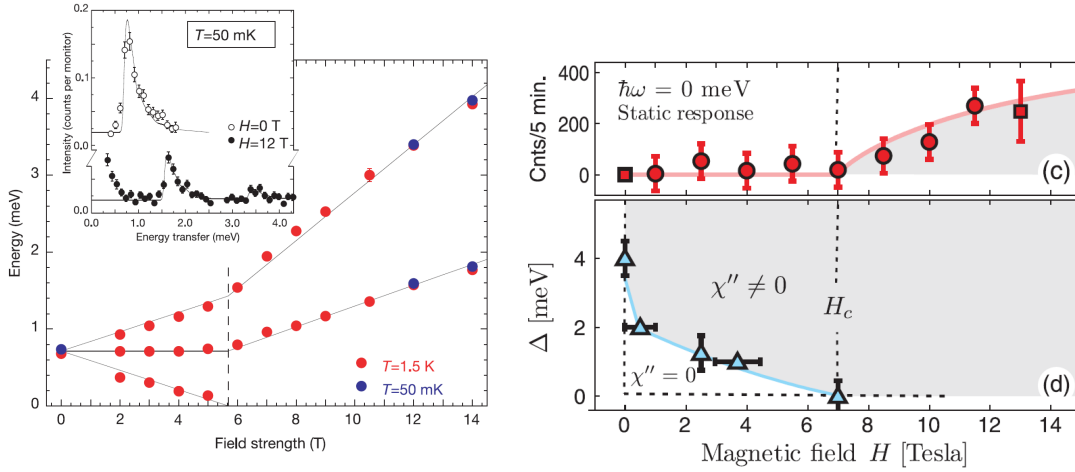


FIGURE 5.14 – **Figure de gauche** : Évolution de l'énergie de l'excitation magnétique de TlCuCl_3 avec l'application d'un champ magnétique à $Q=(0\ 0\ 0)$ r.l.u. Les données sont montrées pour deux températures : $T = 1.5\text{ K}$ pour les symboles rouges et $T=50\text{ mK}$ pour les symboles bleues. Les traits pleins sont des fits linéaires représentant un splitting Zeeman. Le champ critique H_c correspond au trait pointillé. Extrait de [Ruegg 2003]. **Figure de droite** : Le panneau supérieur (c) correspond au signal élastique mesuré au vecteur de l'ordre magnétique Q_{IC} en fonction du champ magnétique. Le panneau inférieur (d) représente l'évolution du gap magnétique Δ en fonction du champ magnétique. Une nouvelle fois, la ligne pointillée correspond au champ critique H_c où l'ordre magnétique apparaît. Extrait de [Chang 2009]

magnétique est supprimé par l'application d'un champ magnétique. L'annulation de l'un des modes de l'excitation ou du gap magnétique aboutit dans les deux cas à l'apparition d'un ordre magnétique (commensurable ou incommensurable). Les évolutions de l'excitation et du gap magnétique des deux composés sont présentés sur la figure 5.14.

Dresser un parallèle avec CeCoIn_5 est donc très tentant pour expliquer l'apparition de la phase LTHF. Les travaux de V. P. Michal et V. Mineev [Michal 2011b] et [Michal 2011a] donnent un point de vue théorique sur cette hypothèse. En prenant un champ appliqué dans le plan basal et en tenant compte uniquement de l'effet Zeeman, ils obtiennent une diminution de l'énergie de la résonance et la condensation du mode quand Ω_{res} s'annule aboutissant à un ordre magnétique. L'ingrédient principal est l'augmentation de la susceptibilité avec le champ magnétique à cause de la supraconductivité d -wave. Cet effet est présenté sur la figure 5.15 dans le panneau de gauche. Le panneau de droite présente la prédiction théorique pour l'évolution de Ω_{res} en fonction du champ magnétique avec une comparaison avec nos points expérimentaux.

Cette théorie recoupe aussi plusieurs de nos observations :

- La sensibilité de la phase LTHF à la direction du champ est explicitée : seule la susceptibilité suivant l'axe- c a une dépendance en champ.
- Un seul mode est observé dans nos données expérimentales. La théorie développée prévoit un splitting de l'excitation en deux modes, cependant le mode à énergie supérieure aurait une intensité très faible vu qu'il serait amorti par le continuum électron-trou. Ceci expliquerait pourquoi il ne serait pas détectable ou "évanescent", i.e très sensible aux conditions de résolution expérimentale.

Ainsi cette théorie reposant sur une condensation de la résonance peut permettre d'expliquer l'apparition de la phase ordonnée et explique certains résultats expérimentaux. Cependant elle présente également des défauts comme l'incommensurabilité du vecteur d'ordre magnétique alors que la résonance est commensurable. Ceci pourrait être expliqué par une dispersion de la résonance mais pour le moment aucune mesure ne confirme ou infirme cette hypothèse.

On peut donc constater que l'étude de la résonance sous champ et son rapport avec la phase LTHF est un domaine riche en possibilité et qui demande de nouvelles expériences pour statuer sur leur lien et la nature de la phase LTHF.

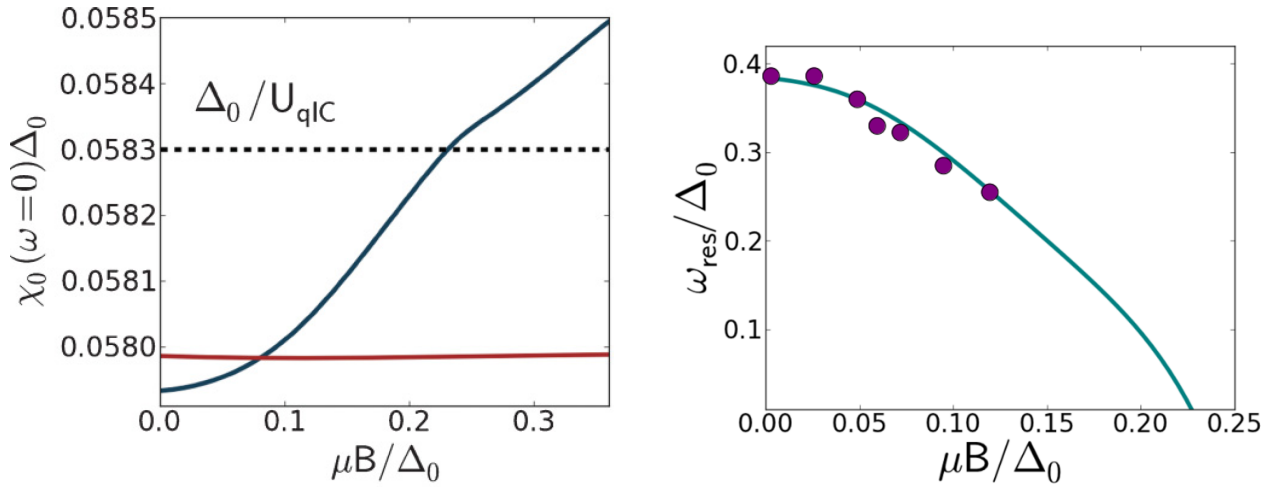


FIGURE 5.15 – **Figure de gauche :** La ligne bleue représente l'évolution de la susceptibilité statique dans l'état supraconducteur suivant l'axe- c alors que la ligne rouge est celle de la susceptibilité dans l'état normal. La ligne pointillée correspond à la condition d'instabilité pour l'apparition d'une onde de densité de spin dans l'état supraconducteur. Extrait de [Michal 2011b]. **Figure de droite :** Diminution de l'énergie de la résonance avec le champ magnétique prévue par la théorie, les points sont ceux de l'expérience avec le champ suivant $[1,-1,0]$. Extrait de [Michal 2011a]

5.6 Conclusion

Nos mesures de l'évolution de la résonance sous un champ magnétique sont riches en information mais également complexes à interpréter. On peut difficilement statuer sur les critères comme la nature de la résonance ou quel est l'effet principal du champ magnétique. Cependant nos résultats apportent un faisceau d'indices et on peut faire quelques hypothèses dans cette conclusion.

Ainsi nous avons pu constater que le champ magnétique fait décroître Ω_{res} mais plusieurs raisons peuvent être derrière cette décroissance. Notre supposition, appuyée par l'étude de Michal *et al.*, est que l'effet Zeeman est déterminant dans l'évolution de la résonance. Un indice important de cette hypothèse est l'expérience avec le changement d'orientation du champ. Si l'effet orbital était déterminant, on se serait alors attendu à un changement de l'évolution de Ω_{res} lorsque H_{c2} diminue.

En ce qui concerne la question de la nature de la résonance, nos mesures penchent vers la théorie d'un "splitting" sous champ de l'excitation en deux modes. Plusieurs indices sont présents dans nos résultats comme la largeur du pic à 2.5 T, le mode à plus haute énergie observé sur IN14 et les expériences de Chris Stock.² Et si comme nous l'avons précisé, il n'y a pas de certitudes, le scénario du "splitting" d'un doublet est en très bon accord avec les théories développées. En effet, à cause de l'anisotropie, aussi bien le modèle du magnon que de l'exciton de spin aboutissent à un doublet.

Nos mesures sous champ constituent une étape dans l'étude du phénomène que sont les résonances de spin. Et si elles n'apportent pas de réponses précises, on peut espérer que combiné avec d'autres expériences, elles aboutissent à une image claire de la résonance de spin dans $CeCoIn_5$.

2. Des expériences récentes de diffusion de neutrons polarisés sous champ indiquent un splitting de la résonance.

Chapitre 6

Conclusion

Résultats

Dans cette thèse, nous avons présenté nos mesures de diffusion inélastique de neutrons dans CeCoIn_5 . Nous avons étudié la résonance de spin présente dans le composé de deux manières : en introduisant des impuretés et en appliquant un champ magnétique. La résonance de spin a été minutieusement étudiée dans les cuprates, première famille de composés présentant cette excitation. L'étude que nous avons menée dans CeCoIn_5 avait pour objectif de valider les observations faites dans ces composés mais également d'apporter de nouveaux éléments d'informations grâce aux possibilités dont nous disposions. La faible échelle d'énergie dans CeCoIn_5 combinée à l'excellente résolution des spectromètres trois-axes à neutrons froids nous a permis de déterminer précisément l'évolution de la résonance en fonction de la densité d'impuretés ou du champ magnétique. Les expériences réalisées se sont souvent révélées délicates à causes des conditions expérimentales notamment l'obligation d'être à très basse température et la faible intensité des signaux.

L'introduction d'impuretés dans un supraconducteur est une manière de diminuer le gap supraconducteur mais en fonction de la densité d'impureté et du matériau de nombreux phénomènes sont possibles. Nous nous sommes limités à de faibles concentrations pour nos mesures afin d'avoir uniquement un effet de "pair-breaking". Nos résultats portent sur trois valeurs de substitutions Lanthane et une valeur de substitution Nd. Nous avons constaté que l'énergie de la résonance diminuait avec l'introduction d'impuretés, résultat qui peut sembler intuitif mais qui est contredit dans le cas de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ dopé au Zinc et d'un modèle théorique développé pour les supraconducteurs au Fer. Le ratio $\frac{\Omega_{res}}{k_B T_c}$ qui traduit la dépendance de la résonance en fonction de la température critique peut donc diminuer ou augmenter en fonction du type de composé et d'impuretés (magnétiques ou non magnétiques). Une autre observation est l'élargissement de la résonance, phénomène prédit théoriquement et observé dans toutes les familles de composés.

Le résultat le plus difficile à interpréter est l'augmentation de l'intensité magnétique en dessous de T_c avec l'impureté Lanthane. La comparaison avec les effets du Zinc dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ nous permet d'avancer une réponse à nos mesures expérimentales. En effet, dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$, l'introduction de zinc va avoir deux effets remarquables : un transfert de poids spectral de la résonance à un signal de basses énergies dans la phase supraconductrice et la persistance d'une intensité magnétique à l'énergie de la résonance dans la phase non-supraconductrice. Notre supposition concernant CeCoIn_5 est que nous avons les deux phénomènes qui vont cependant partager la même échelle d'énergie contrairement à $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$. En effet, le signal quasi-élastique dans CeCoIn_5 est de 0.3 meV et l'énergie de la résonance est aux alentours de 0.26 meV avec une substitution de 5% de Lanthane. Aussi est-il délicat de séparer la contribution de l'un ou de l'autre.

Les mesures de diffusion inélastique de neutrons en champ magnétique sont également complexes à analyser. L'effet du champ magnétique sur un supraconducteur a toujours été délicat à considérer puisque le matériau devient inhomogène (présence de vortex). De nombreux phénomènes sont possibles (effet orbital et effet Zeeman) et observables, et la richesse du diagramme de phase (H,T) de CeCoIn_5 ne facilite pas l'interprétation des données. En se limitant aux observations expérimentales, on peut constater que l'effet du champ peut sembler

similaire à celui des impuretés avec une diminution de l'énergie de la résonance et une augmentation de la largeur quand l'intensité du champ magnétique croît. Mais les causes de cette évolution sont très différentes. En effet, dans le cas du champ magnétique, nous suspectons un "splitting" Zeeman de l'excitation. De nombreux indices sont présents mais nos mesures ne nous permettent pas de conclure définitivement. Nos données actuelles montrent que Ω_{res} décroît plus vite que $T_c(H)$ et donc que $\frac{\Omega_{res}}{k_B T_c}$ n'est pas conservé sous champ.

Une proposition théorique intéressante dans ce contexte est que la résonance de spin serait le mode "mou" associé à la phase antiferromagnétique induite sous champ.

Modèle de l'exciton de spin et $CeCoIn_5$

Avec la multiplication de composés présentant une résonance de spin, la question se pose de savoir si on peut décrire ces excitations par un unique modèle ou si l'origine de la résonance diffère entre chaque composé. Le modèle de l'exciton développé pour les cuprates est le candidat principal et un des buts de cette thèse était de savoir si la résonance dans $CeCoIn_5$ lui était conforme ou non. Nos mesures apportent à la fois des éléments pour et contre une compatibilité avec le modèle de l'exciton.

Tout d'abord, les mesures sur les impuretés sont en accord avec le modèle de l'exciton vu que nos résultats sont conformes à des prédictions théoriques réalisées sur les cuprates et basées sur ce modèle. Pour les mesures sous champ magnétique, nos résultats sont plus mitigés. Nous n'avons pas observé clairement un splitting de l'excitation en trois modes. Cependant à cause de l'anisotropie dans $CeCoIn_5$, il est possible que le splitting de l'exciton de spin n'aboutisse qu'à deux modes. Auquel cas le modèle de l'exciton devient difficile à discerner du modèle du magnon.

Un résultat en opposition avec le modèle de l'exciton est la pente de Ω_{res} sous champ qui correspond au moment magnétique localisé des électrons $4f$ alors que le modèle de l'exciton est basé sur une approche itinérante. De plus, la valeur de la pente est celle du spin effectif $S = 1/2$ et non d'un spin $S = 1$ attendu dans le cas de l'exciton.

Ainsi nous ne pouvons pas apporter une réponse quant à savoir si la résonance de $CeCoIn_5$ est un exciton ou un autre type d'excitation mais nos résultats penchent plutôt en faveur du modèle de l'exciton qui demanderait à être adapté au cas des électrons f et de leur nature duale itinérante/localisée.

Perspectives

La suite directe du travail accompli pendant cette thèse serait de réaliser des expériences de diffusion inélastique avec des neutrons polarisés. Ce type de mesures permettrait de déterminer la polarisation des fluctuations dans $CeCoIn_5$. En effet, il y a désaccord entre les mesures de susceptibilité macroscopiques et de RMN qui indiqueraient des fluctuations majoritairement suivant l'axe- c et respectivement dans le plan. Il serait également possible de déterminer la dégénérescence du mode, plus précisément d'observer si la résonance se sépare en deux modes en champ magnétique. Ces expériences sont difficiles à faire à cause de la perte d'intensité provoquée par la polarisation des neutrons augmentant d'autant le temps de comptage (Les mesures effectuées pendant cette thèse avaient des temps de comptage de l'ordre de trente minutes à une heure).

Une autre série d'expériences serait d'étudier le signal magnétique dans la phase non-supraconductrice. Nous avons pu voir que les résultats sur la substitution Lanthane étaient difficiles à interpréter notamment à cause du manque de données sur cette phase.

Pour finir, il serait important de continuer l'étude des impuretés non-magnétiques et magnétiques dans $CeCoIn_5$. Le plus important est de poursuivre les expériences avec le Néodyme, notamment l'étude de la résonance dans la phase antiferromagnétique. Cela permettrait de déterminer comment se comporte la résonance dans une phase ordonnée magnétiquement. En relation avec les phases magnétiques ordonnées, il serait intéressant d'approfondir les études des excitations dans la phase induite sous champ.

Références

- [Anderson 1959] P. W. Anderson. *Knight Shift in Superconductors*. Phys. Rev. Lett., vol. 3, pages 325–326, Oct 1959.
- [Aperis 2010] Alexandros Aperis, Georgios Varelogiannis et Peter B. Littlewood. *Magnetic-Field-Induced Pattern of Coexisting Condensates in the Superconducting State of CeCoIn₅*. Phys. Rev. Lett., vol. 104, page 216403, May 2010.
- [Balatsky 2006] A. V. Balatsky, I. Vekhter et Jian-Xin Zhu. *Impurity-induced states in conventional and unconventional superconductors*. Rev. Mod. Phys., vol. 78, no. 2, pages 373–433, May 2006.
- [Bianchi 2002] A. Bianchi, R. Movshovich, N. Oeschler, P. Gegenwart, F. Steglich, J. D. Thompson, P. G. Pagliuso et J. L. Sarrao. *First-Order Superconducting Phase Transition in CeCoIn₅*. Phys. Rev. Lett., vol. 89, page 137002, Sep 2002.
- [Bianchi 2003] A. Bianchi, R. Movshovich, C. Capan, P. G. Pagliuso et J. L. Sarrao. *Possible Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov Superconducting State in CeCoIn₅*. Phys. Rev. Lett., vol. 91, page 187004, Oct 2003.
- [Bianchi 2008] A. D. Bianchi, M. Kenzelmann, L. DeBeer-Schmitt, J. S. White, E. M. Forgan, J. Mesot, M. Zolliker, J. Kohlbrecher, R. Movshovich, E. D. Bauer, J. L Sarrao, Z. Fisk, C. Petrovic et M. R. Eskildsen. *Superconducting Vortices in CeCoIn₅ : Toward the Pauli-Limiting Field*. Science, vol. 319, page 177, 2008.
- [Blackburn 2006] E. Blackburn, A. Hiess, N. Bernhoeft et G. H. Lander. *Inelastic neutron scattering from UPd₂Al₃ under high magnetic fields*. Phys. Rev. B, vol. 74, no. 2, page 024406, Jul 2006.
- [Blackburn 2010] E. Blackburn, P. Das, M. R. Eskildsen, E. M. Forgan, M. Laver, C. Niedermayer, C. Petrovic et J. S. White. *Exploring the Fragile Antiferromagnetic Superconducting Phase in CeCoIn₅*. Phys. Rev. Lett., vol. 105, page 187001, Oct 2010.
- [Bourdarot 2010] Frederic Bourdarot, Elena Hassinger, Stephane Raymond, Dai Aoki, Valentin Taufour, Louis-Pierre Regnault et Jacques Flouquet. *Precise Study of the Resonance at $\mathbf{Q}_0 = (1, 0, 0)$ in URu₂Si₂*. Journal of the Physical Society of Japan, vol. 79, no. 6, page 064719, 2010.
- [Bourges 1996] P. Bourges, L. P. Regnault, Y. Sidis et C. Vettier. *Inelastic-neutron-scattering study of antiferromagnetic fluctuations in YBa₂Cu₃O_{6.97}*. Phys. Rev. B, vol. 53, pages 876–885, Jan 1996.
- [Bulut 2000] N. Bulut. *Effects of dilute Zn impurities on the uniform magnetic susceptibility of YBa₂Cu₃O_{7-δ}*. Phys. Rev. B, vol. 61, no. 13, pages 9051–9054, Apr 2000.
- [Castellan 2011] J.-P. Castellan, S. Rosenkranz, E. A. Goremychkin, D. Y. Chung, S. Todorov, M. G. Kanatzidis, I. Eremin, J. Knolle, A. V. Chubukov, S. Maiti, M. R. Norman, F. Weber, H. Claus, T. Guidi, R. I. Bewley et R. Osborn. *Effect of Fermi Surface Nesting on Resonant Spin Excitations in Ba_{1-x}K_xFe₂As₂*. arXiv :1106.0771, 2011.
- [Chang 2009] J. Chang, N. B. Christensen, Ch. Niedermayer, K. Lefmann, H. M. Rønnow, D. F. McMorrow, A. Schneidewind, P. Link, A. Hiess, M. Boehm, R. Mottl, S. Pailh  s, N. Momono, M. Oda, M. Ido et J. Mesot. *Magnetic-Field-Induced Soft-Mode Quantum Phase Transition in the High-Temperature Superconductor La_{1.855}Sr_{0.145}CuO₄ : An Inelastic Neutron-Scattering Study*. Phys. Rev. Lett., vol. 102, no. 17, page 177006, Apr 2009.

- [Chesser 1973] N. J. Chesser et J. D. Axe. *Acta. Cryst.*, vol. A29, page 160, 1973.
- [Christianson 2008] A D Christianson, E. A. Goremychkin, R. Osborn, S. Rosenkranz, M D Lumsden, D. Malia-
liakas C., I. S. Todorov, H. Claus, D. Y. Chung, M. G. Kanatzidis, R. I. Bewley et T. Guidi. *Un-
conventional superconductivity in $Ba_{0.6}K_{0.4}Fe_2As_2$ from inelastic neutron scattering*. *Nature* (London),
vol. 456, pages 930–932, 2008.
- [Chubukov 2008] A. V. Chubukov et L. P. Gor'kov. *Spin Resonance in Three-Dimensional Superconductors :
The Case of $CeCoIn_5$* . *Phys. Rev. Lett.*, vol. 101, no. 14, page 147004, Oct 2008.
- [Cooper 1967] M. J. Cooper et R. Nathans. *Acta. Cryst.*, vol. 23, page 357, 1967.
- [Correa 2007] V. F. Correa, T. P. Murphy, C. Martin, K. M. Purcell, E. C. Palm, G. M. Schmiedeshoff, J. C.
Cooley et S. W. Tozer. *Magnetic-Field-Induced Lattice Anomaly inside the Superconducting State of
 $CeCoIn_5$: Anisotropic Evidence of the Possible Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov State*. *Phys. Rev.
Lett.*, vol. 98, page 087001, Feb 2007.
- [Curro 2001] N. J. Curro, B. Simovic, P. C. Hammel, P. G. Pagliuso, J. L. Sarrao, J. D. Thompson et G. B.
Martins. *Anomalous NMR magnetic shifts in $CeCoIn_5$* . *Phys. Rev. B*, vol. 64, page 180514, Oct 2001.
- [Dai 2000] P. Dai, H. A. Mook, Aepplin G., S. M. Hayden et F. Dogan. *Resonance as a measure of pairing
correlations in the high- T_c superconductors $YBa_2Cu_3O_{6.6}$* . *Nature* (London), vol. 406, pages 965–968,
2000.
- [Dorner 1972] B. Dorner. *Acta. Cryst.*, vol. A28, page 319, 1972.
- [Eremin 2008] I. Eremin, G. Zwicknagl, P. Thalmeier et P. Fulde. *Feedback Spin Resonance in Superconducting
 $CeCu_2Si_2$ and $CeCoIn_5$* . *Phys. Rev. Lett.*, vol. 101, no. 18, page 187001, Oct 2008.
- [Eschrig 2001] M. Eschrig, M. R. Norman et B. Jankó. *Influence of vortices on the magnetic resonance in
cuprate superconductors*. *Phys. Rev. B*, vol. 64, no. 13, page 134509, Sep 2001.
- [Flint 2010] Rebecca Flint et Piers Coleman. *Tandem Pairing in Heavy-Fermion Superconductors*. *Phys. Rev.
Lett.*, vol. 105, page 246404, Dec 2010.
- [Fong 1999a] H. F. Fong, P. Bourges, Y. Sidis, L. P. Regnault, J. Bossy, A. Ivanov, D. L. Milius, I. A. Aksay et
B. Keimer. *Effect of Nonmagnetic Impurities on the Magnetic Resonance Peak in $YBa_2Cu_3O_7$* . *Phys.
Rev. Lett.*, vol. 82, no. 9, pages 1939–1942, Mar 1999.
- [Fong 1999b] H. F. Fong, P. Bourges, Y. Sidis, L.-P. Regnault, A. S. Ivanov, G. D. Gu, N. Koshizuka et
B. Keimer. *Nature*(London), vol. 398, page 588, 1999.
- [Fulde 1964] R. A. Fulde P. and Ferrell. *Superconductivity in a Strong Spin-Exchange Field*. *Phys. Rev.*, vol. 135,
pages A550–A563, Aug 1964.
- [Geibel 1991] C. Geibel, C. Schank, S. Thies, H. Kitazawa, C.D. Bredl, A. Böhm, M. Rau, A. Grauel, R. Cas-
pary, R. Helfrich, U. Ahleim, G. Weber et F. Steglich. *Heavy-fermion superconductivity at $T_c=2K$ in
the antiferromagnet UPd_2Al_3* . *Z. Phys. B. Condensed Matter*, vol. 84, page 1, 1991.
- [Golub 1987] R. Golub et R. Gähler. *A neutron resonance spin echo spectrometer for quasi-elastic and inelastic
scattering*. *Phys. Lett. A*, vol. 123, pages 43–48, 1987.
- [Golub 2006] R. Golub, R. Gähler, K. Habicht et S. Klimko. *Bunching of continuous neutron beams*. *Phys.
Lett. A*, vol. 349, pages 59–66, 2006.
- [He 2002] H. He, P. Bourges, Y. Sidis, C. Ulrich, L. P. Regnault, S. Pailhès, N. S. Berzigiarova, N. N. Koles-
nikov et B. Keimer. *Magnetic Resonant Mode in the Single-Layer High-Temperature Superconductor
 $Tl_2Ba_2CuO_{6+\delta}$* . *Science*, vol. 295, page 1045, 2002.
- [Hegger 2000] H. Hegger, C. Petrovic, E. G. Moshopoulou, M. F. Hundley, J. L. Sarrao, Z. Fisk et J. D.
Thompson. *Pressure-Induced Superconductivity in Quasi-2D $CeRhIn_5$* . *Phys. Rev. Lett.*, vol. 84, pages
4986–4989, May 2000.

- [Hiess 2006] A Hiess, N Bernhoeft, N Metoki, G H Lander, B Roessli, N K Sato, N Aso, Y Haga, Y Koike, T Komatsubara et Y Onuki. *Magnetization dynamics in the normal and superconducting phases of UPd₂Al₃ : I. Surveys in reciprocal space using neutron inelastic scattering*. Journal of Physics : Condensed Matter, vol. 18, no. 27, page R437, 2006.
- [Howald 2011] Ludovic Howald, Gabriel Seyfarth, Georg Knebel, Gerard Lapertot, Dai Aoki et Jean-Pascal Brison. *Behavior of the Quantum Critical Point and the Fermi-Liquid Domain in the Heavy Fermion Superconductor CeCoIn₅ Studied by Resistivity*. Journal of the Physical Society of Japan, vol. 80, no. 2, page 024710, 2011.
- [Hu 2008] Rongwei Hu, Y. Lee, J. Hudis, V. F. Mitrovic et C. Petrovic. *Composition and field-tuned magnetism and superconductivity in Nd_{1-x}Ce_xCoIn₅*. Phys. Rev. B, vol. 77, no. 16, page 165129, Apr 2008.
- [Inosov 2010] D. S. Inosov, J. T. Park, P. Bourges, D. L. Sun, Y. Sidis, A. Schneidewind, K. Hradil, D. Haug, C. T. Lin, B. Keimer et V. Hinkov. *Normal-state spin dynamics and temperature-dependent spin-resonance energy in optimally doped BaFe_{1.85}Co_{0.15}As₂*. Nature Physics, vol. 6, pages 178–181, 2010.
- [Inosov 2011] D. S. Inosov, J. T. Park, A. Charnukha, Yuan Li, A. V. Boris, B. Keimer et V. Hinkov. *Crossover from weak to strong pairing in unconventional superconductors*. Phys. Rev. B, vol. 83, page 214520, Jun 2011.
- [Ismer 2007] J.-P. Ismer, Ilya Eremin, Enrico Rossi et Dirk K. Morr. *Magnetic Resonance in the Spin Excitation Spectrum of Electron-Doped Cuprate Superconductors*. Phys. Rev. Lett., vol. 99, no. 4, page 047005, Jul 2007.
- [Izawa 2001] K. Izawa, H. Yamaguchi, Yuji Matsuda, H. Shishido, R. Settai et Y. Onuki. *Angular Position of Nodes in the Superconducting Gap of Quasi-2D Heavy-Fermion Superconductor CeCoIn₅*. Phys. Rev. Lett., vol. 87, page 057002, Jul 2001.
- [Kakuyanagi 2005] K. Kakuyanagi, M. Saitoh, K. Kumagai, S. Takashima, M. Nohara, H. Takagi et Y. Matsuda. *Texture in the Superconducting Order Parameter of CeCoIn₅ Revealed by Nuclear Magnetic Resonance*. Phys. Rev. Lett., vol. 94, page 047602, Feb 2005.
- [Kamihara 2008] Y. Kamihara, T. Watanabe, M. Hirano et H. Hosono. *Iron-based Layered Superconducting La[O_{1-x}F_x]As (x=0.05-0.12) with T_c = 26 K*. J. Am. Chem. Soc., vol. 130, pages 3296–3297, 2008.
- [Kato 2011] Y. Kato, C. D. Batista et I. Vekhter. *Antiferromagnetic order in Pauli limited unconventional superconductors*. arXiv :1104.0391., 2011.
- [Kenzelmann 2008] M. Kenzelmann, Th. Strässle, C. Niedermayer, M. Sigrist, B. Padmanabhan, M. Zolliker, A. D. Bianchi, R. Movshovich, E. D. Bauer, J. L. Sarrao et J. D. Thompson. *Coupled Superconducting and Magnetic Order in CeCoIn₅*. Science, vol. 321, page 1652, 2008.
- [Kenzelmann 2010] M. Kenzelmann, S. Gerber, N. Egetenmeyer, J. L. Gavilano, Th. Strässle, A. D. Bianchi, E. Ressouche, R. Movshovich, E. D. Bauer, J. L. Sarrao et J. D. Thompson. *Evidence for a Magnetically Driven Superconducting Q Phase of CeCoIn₅*. Phys. Rev. Lett., vol. 104, page 127001, Mar 2010.
- [Knafo 2003] W. Knafo, S. Raymond, B. Fak, G. Lapertot, P. C. Canfield et J. Flouquet. *Study of low-energy magnetic excitations in single-crystalline CeIn₃ by inelastic neutron scattering*. Journal of Physics : Condensed Matter, vol. 15, no. 22, page 3741, 2003.
- [Knebel 2008] Georg Knebel, Dai Aoki, Jean-Pascal Brison et Jacques Flouquet. *The Quantum Critical Point in CeRhIn₅ : A Resistivity Study*. Journal of the Physical Society of Japan, vol. 77, no. 11, page 114704, 2008.
- [Knebel 2010] G. Knebel, D. Aoki, J. P. Brison, L. Howald, G Lapertot, J. Panarin, S Raymond et J Flouquet. *Competition and/or coexistence of antiferromagnetism and superconductivity in CeRhIn₅ and CeCoIn₅*. Physica Status Solidi (B), vol. 247, pages 557–562, 2010.
- [Knebel 2011] G. Knebel, D. Aoki et J Flouquet. *Antiferromagnetism and Superconductivity in Cerium based Heavy Fermion Compounds*. arXiv :1105.3989v1, 2011.

- [Koitzsch 2009] A. Koitzsch, I. Opahle, S. Elgazzar, S. V. Borisenko, J. Geck, V. B. Zabolotnyy, D. Inosov, H. Shiozawa, M. Richter, M. Knupfer, J. Fink, B. Büchner, E. D. Bauer, J. L. Sarrao et R. Follath. *Electronic structure of CeCoIn₅ from angle-resolved photoemission spectroscopy*. Phys. Rev. B, vol. 79, page 075104, Feb 2009.
- [Koutroulakis 2008] G. Koutroulakis, V. F. Mitrović, M. Horvatić, C. Berthier, G. Lapertot et J. Flouquet. *Field Dependence of the Ground State in the Exotic Superconductor CeCoIn₅ : A Nuclear Magnetic Resonance Investigation*. Phys. Rev. Lett., vol. 101, no. 4, page 047004, Jul 2008.
- [Koutroulakis 2010] G. Koutroulakis, M. D. Stewart, V. F. Mitrović, M. Horvatić, C. Berthier, G. Lapertot et J. Flouquet. *Field Evolution of Coexisting Superconducting and Magnetic Orders in CeCoIn₅*. Phys. Rev. Lett., vol. 104, page 087001, Feb 2010.
- [Larkin 1965] Y. N. Larkin A. I. and Ovchinnikov. *Nonuniform state of superconductors*. Sov. Phys. JETP, vol. 20, page 762, 1965.
- [Lashley 2003] J. C. Lashley. *Critical examination of heat capacity measurements made on a Quantum Design physical property measurements system*. Cryogenics, vol. 43, pages 369–378, 2003.
- [Li 1998] Jian-Xin Li, Wei-Guo Yin et Chang-De Gong. *Impurity effects on the spin excitation spectra in a d-wave superconductor*. Phys. Rev. B, vol. 58, no. 5, pages 2895–2899, Aug 1998.
- [Li 2011] Shiliang Li, Xingye Lu, Meng Wang, Hui-qian Luo, Miaoyin Wang, Chenglin Zhang, Enrico Faulhaber, Louis-Pierre Regnault, Deepak Singh et Pengcheng Dai. *Effect of the in-plane magnetic field on the neutron spin resonance in optimally doped FeSe_{0.4}Te_{0.6} and BaFe_{1.9}Ni_{0.1}As₂ superconductors*. Phys. Rev. B, vol. 84, page 024518, Jul 2011.
- [Lorenzo 2007] J. E. Lorenzo, C. Boullier, L. P. Regnault, U. Ammerahl et A. Revcolevschi. *Dynamical spin chirality and spin anisotropy in Sr₁₄Cu₂₄O₄₁ : A neutron polarization analysis study*. Phys. Rev. B, vol. 75, page 054418, Feb 2007.
- [Lovesey 1984] S.W. Lovesey. *Theory of neutron scattering from condensed matter* (vol. 2). Clarendon, 1984.
- [Lumsden 2009] M. D. Lumsden, A. D. Christianson, D. Parshall, M. B. Stone, S. E. Nagler, G. J. MacDougall, H. A. Mook, K. Lokshin, T. Egami, D. L. Abernathy, E. A. Goremychkin, R. Osborn, M. A. McGuire, A. S. Sefat, R. Jin, B. C. Sales et D. Mandrus. *Two-dimensional resonant magnetic excitation in BaFe_{1.84}Co_{0.16}As₂*. Phys. Rev. Lett., vol. 102, page 107005, Mar 2009.
- [Lumsden 2010] M. D. Lumsden et A. D. Christianson. *Magnetism in Fe-based superconductors*. Journal of Physics : Condensed Matter, vol. 22, no. 20, page 203203, 2010.
- [Mackenzie 2003] A. P. Mackenzie et Y. Maeno. *The superconducting of Sr₂RuO₄ and the physics of spin-triplet pairing*. Rev. Mod. Phys., vol. 75, 2003.
- [Maehira 2003] Takahiro Maehira, Takashi Hotta, Kazuo Ueda et Akira Hasegawa. *Relativistic Band-Structure Calculations for CeTIn₅ (T = Ir and Co) and Analysis of the Energy Bands by Using Tight-Binding Method*. Journal of the Physical Society of Japan, vol. 72, no. 4, pages 854–864, 2003.
- [Maiti 2011] S. Maiti, J. Knolle, I. Eremin et A. V. Chubukov. *Effect of nodes, ellipticity and impurities on the spin resonance in Iron-based superconductors*. arXiv :1108.0266v1, 2011.
- [Marshall 1971] W. Marshall et S. W. Lovesey. *Theory of thermal neutron scattering*. Oxford University Press, 1971.
- [Martin 2005] C. Martin, C. C. Agosta, S.W. Tozer, H. A. Radovan, E. C. Palm, T.P. Murphy et J.L. Sarrao. *Evidence for the Fulde-Ferrel-Larkin-Ovchinnikov state in CeCoIn₅ from penetration depth measurements*. Phys. Rev. B, vol. 71, page 020503(R), 2005.
- [Martin 2011] N. Martin, L.-P. Regnault, S. Klimko, J. E. Lorenzo et R. Gähler. *Larmor diffraction measurement of the temperature dependence of lattice constants in CuGeO₃*. Physica B : Condensed Matter, vol. 406, no. 12, pages 2333 – 2336, 2011.

- [Mathur 1998] N. D. Mathur, F. M. Grosche, S. R. Julian, I. R. Walker, D. M. Freye, R. K. W. Haselwimmer et G. G. Lonzarich. *Magnetically mediated superconductivity in heavy-fermion compounds*. Nature (London), vol. 394, pages 39–43, 1998.
- [McCollam 2005] A. McCollam, S. R. Julian, P. M. C. Rourke, D. Aoki et J. Flouquet. *Anomalous de Haas–van Alphen Oscillations in CeCoIn₅*. Phys. Rev. Lett., vol. 94, page 186401, May 2005.
- [Metoki 1997] Naoto Metoki, Yoshinori Haga, Yoshihiro Koike, Naofumi Aso et Yoshichika Ōnuki. *Coupling between Magnetic and Superconducting Order Parameters and Evidence for the Spin Excitation Gap in the Superconducting State of a Heavy Fermion Superconductor UPd₂Al₃*. Journal of the Physical Society of Japan, vol. 66, no. 9, pages 2560–2563, 1997.
- [Michal 2011a] V. P. Michal et V. P. Mineev. *Field induced collective spin exciton condensation in a heavy electron $d_{x^2-y^2}$ -wave superconductor*. arXiv :1110.0387v2, 2011.
- [Michal 2011b] V. P. Michal et V. P. Mineev. *Field-induced spin-exciton condensation in the $d_{x^2-y^2}$ -wave superconductor CeCoIn₅*. Phys. Rev. B, vol. 84, page 052508, Aug 2011.
- [Monthoux 2007] P. Monthoux, D. Pines et G. G. Lonzarich. *Superconductivity without phonons*. Nature (London), vol. 450, pages 1177–1183, 2007.
- [Motoyama 2006] E. M. Motoyama, P. K. Mang, D. Petitgrand, G. Yu, O. P. Vajk, I. M. Vishik et M. Greven. *Magnetic Field Effect on the Superconducting Magnetic Gap of Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO₄*. Phys. Rev. Lett., vol. 96, no. 13, page 137002, Apr 2006.
- [Movshovich 2001] R. Movshovich, M. Jaime, J. D. Thompson, C. Petrovic, Z. Fisk, P. G. Pagliuso et J. L. Sarrao. *Unconventional Superconductivity in CeIrIn₅ and CeCoIn₅ : Specific Heat and Thermal Conductivity Studies*. Phys. Rev. Lett., vol. 86, pages 5152–5155, May 2001.
- [Nakatsuji 2004] Satoru Nakatsuji, David Pines et Zachary Fisk. *Two Fluid Description of the Kondo Lattice*. Phys. Rev. Lett., vol. 92, page 016401, Jan 2004.
- [Nicklas 2007] M. Nicklas, O. Stockert, Tuson Park, K. Habicht, K. Kiefer, L. D. Pham, J. D. Thompson, Z. Fisk et F. Steglich. *Magnetic structure of Cd-doped CeCoIn₅*. Phys. Rev. B, vol. 76, page 052401, Aug 2007.
- [Paglione 2007] J. Paglione, T. A. Sayles, P.-C. Ho, J. R. Jeffries et M. B. Maple. *Incoherent non-Fermi-liquid scattering in a Kondo Lattice*. Nature Physics, vol. 3, pages 703–706, 2007.
- [Petrovic 2001] C. Petrovic, P. G. Pagliuso, M. F. Hundley, R. Movshovich, J. L. Sarrao, J. D. Thompson, Z. Fisk et P. Monthoux. *Heavy-fermion superconductivity in CeCoIn 5 at 2.3 K*. Journal of Physics : Condensed Matter, vol. 13, no. 17, page L337, 2001.
- [Petrovic 2002] C. Petrovic, S. L. Bud’ko, V. G. Kogan et P. C. Canfield. *Effects of La substitution on the superconducting state of CeCoIn₅*. Phys. Rev. B, vol. 66, no. 5, page 054534, Aug 2002.
- [Price 1986] D. L. Price et K. Sköld. *Method of experimental physics : Neutron scattering*. Academic Press, Orlando, 1986.
- [Qiu 2009] Yiming Qiu, Wei Bao, Y. Zhao, Collin Broholm, V. Stanev, Z. Tesanovic, Y. C. Gasparovic, S. Chang, Jin Hu, Bin Qian, Minghu Fang et Zhiqiang Mao. *Spin Gap and Resonance at the Nesting Wave Vector in Superconducting FeSe_{0.4}Te_{0.6}*. Phys. Rev. Lett., vol. 103, page 067008, Aug 2009.
- [Regnault 1994] L. P. Regnault, I. Zaliznyak, J. P. Renard et C. Vettier. *Inelastic-neutron-scattering study of the spin dynamics in the Haldane-gap system Ni(C₂H₈N₂)₂NO₂ClO₄*. Phys. Rev. B, vol. 50, pages 9174–9187, Oct 1994.
- [Rossat-Mignod 1991] J. Rossat-Mignod, L.-P. Regnault, C. Vettier, P. Bourges, P. Burlet, J. Bossy, J. Y. Henry et G. Lapertot. *Neutron scattering study of the YBa₂Cu₃O_{6+x} system*. Physica C., vol. 185-189, page 86, 1991.
- [Ruegg 2003] Ch. Ruegg, N. Cavadini, A. Furrer, H.-U. Gudel, K. Kramer, H. Mutka, A. Wildes, K. Habicht et P. Vorderwisch. *Bose Einstein condensation of the triplet states in the magnetic insulator TlCuCl₃*. Nature (London), vol. 423, pages 62–65, 2003.

- [Sakai 2010] Hironori Sakai, Seung-Ho Baek, Stuart E. Brown, Filip Ronning, Eric D. Bauer et Joe D. Thompson. *^{59}Co NMR shift anomalies and spin dynamics in the normal state of superconducting CeCoIn_5 : Verification of two-dimensional antiferromagnetic spin fluctuations*. Phys. Rev. B, vol. 82, no. 2, page 020501, Jul 2010.
- [Sato 2001] N. K. Sato, N. Aso, K. Miyake, R. Shiina, P. Thalmeier, G. Varelogiannis, C. Geibel, F. Steglich, P. Fulde et T. Komatsubara. *Strong coupling between local moments and superconducting "heavy" electrons in UPd_2Al_3* . Nature (London), vol. 410, page 340, 2001.
- [Seyfarth 2008] G. Seyfarth, J. P. Brison, G. Knebel, D. Aoki, G. Lapertot et J. Flouquet. *Multigap Superconductivity in the Heavy-Fermion System CeCoIn_5* . Phys. Rev. Lett., vol. 101, no. 4, page 046401, Jul 2008.
- [Shirane 2002] G. Shirane, S. M. Shapiro et J. M. Tranquada. Neutron scattering with a triple-axis spectrometer. Cambridge University Press, 2002.
- [Sidis 2000] Y. Sidis, P. Bourges, H. F. Fong, B. Keimer, L. P. Regnault, J. Bossy, A. Ivanov, B. Hennion, P. Gautier-Picard, G. Collin, D. L. Millius et I. A. Aksay. *Quantum Impurities and the Neutron Resonance Peak in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$: Ni versus Zn*. Phys. Rev. Lett., vol. 84, no. 25, pages 5900–5903, Jun 2000.
- [Sidis 2007] Y. Sidis, S. Pailhès, V. Hinkov, B. Fauqué, C. Ulrich, L. Capogna, A. Ivanov, L. P. Regnault, B. Keimer et P. Bourges. *Inelastic neutron scattering study of spin excitations in the superconducting state of high temperature superconductors*. C. R. Physique, vol. 8, pages 745–762, 2007.
- [Squire 1997] G. L. Squire. Introduction to the theory of thermal neutron scattering. Dover Publication, 1997.
- [Steglich 1979] F. Steglich, J. Aarts, C. D. Bredl, W. Lieke, D. Meschede, W. Franz et H. Schäfer. *Superconductivity in the Presence of Strong Pauli Paramagnetism : CeCu_2Si_2* . Phys. Rev. Lett., vol. 43, pages 1892–1896, Dec 1979.
- [Stock 2008] C. Stock, C. Broholm, J. Hudis, H. J. Kang et C. Petrovic. *Spin Resonance in the d-Wave Superconductor CeCoIn_5* . Phys. Rev. Lett., vol. 100, no. 8, page 087001, Feb 2008.
- [Stockert 2004] O. Stockert, E. Faulhaber, G. Zwicknagl, N. Stüßer, H. S. Jeevan, M. Deppe, R. Borth, R. Küchler, M. Loewenhaupt, C. Geibel et F. Steglich. *Nature of the A Phase in CeCu_2Si_2* . Phys. Rev. Lett., vol. 92, page 136401, Apr 2004.
- [Stockert 2008] O. Stockert, J. Arndt, A. Schneidewind, H. Schneider, H.S. Jeevan, C. Geibel, F. Steglich et M. Loewenhaupt. *Magnetism and superconductivity in the heavy-fermion compound CeCu_2Si_2 studied by neutron scattering*. Physica B : Condensed Matter, vol. 403, no. 5-9, pages 973 – 976, 2008. Proceedings of the International Conference on Strongly Correlated Electron Systems.
- [Stockert 2010] O. Stockert, J. Arndt, E. Faulhaber, C. Geibel, H. S. Jeevan, S. Kirchner, M. Loewenhaupt, K. Schmalzl, W. Schimdt, Q. Si et F. Steglich. *Magnetically driven superconductivity in CeCu_2Si_2* . Nature Physics, vol. 7, pages 119–124, 2010.
- [Suchaneck 2010] A. Suchaneck, V. Hinkov, D. Haug, L. Schulz, C. Bernhard, A. Ivanov, K. Hradil, C. T. Lin, P. Bourges, B. Keimer et Y. Sidis. *Incommensurate Magnetic Order and Dynamics Induced by Spinless Impurities in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.6}$* . Phys. Rev. Lett., vol. 105, no. 3, page 037207, Jul 2010.
- [Sun 1995] Ye Sun et Kazumi Maki. *Impurity effects in d-wave superconductors*. Phys. Rev. B, vol. 51, no. 9, pages 6059–6063, Mar 1995.
- [Tanatar 2005] M. A. Tanatar, Johnpierre Paglione, S. Nakatsuji, D. G. Hawthorn, E. Boaknin, R. W. Hill, F. Ronning, M. Sutherland, Louis Taillefer, C. Petrovic, P. C. Canfield et Z. Fisk. *Unpaired Electrons in the Heavy-Fermion Superconductor CeCoIn_5* . Phys. Rev. Lett., vol. 95, no. 6, page 067002, Aug 2005.
- [Tayama 2002] T. Tayama, A. Harita, T. Sakakibara, Y. Haga, H. Shishido, R. Settai et Y. Onuki. *Unconventional heavy-fermion superconductor CeCoIn_5 : dc magnetization study at temperatures down to 50 mK*. Phys. Rev. B, vol. 65, page 180504, Apr 2002.

- [Taylor 2011] A. E. Taylor, M. J. Pitcher, R. A. Ewings, T. G. Perring, S. J. Clarke et A. T. Boothroyd. *Antiferromagnetic spin fluctuations in LiFeAs observed by neutron scattering*. Phys. Rev. B, vol. 83, page 220514, Jun 2011.
- [Tinkham 1996] Michael Tinkham. Introduction to superconductivity. Keyword Publishing Services, 1996.
- [Uemura 2009] Y. J. Uemura. *Commonalities in phase and mode*. Nature materials, vol. 8, pages 253–255, 2009.
- [Vignolle 2007] B. Vignolle, S. M. Hayden, D. F. McMorrow, H. M. Ronnow, B. Lake, C. D. Frost et T. G. Perring. *Two energy scales in the spin excitations of the high-temperature superconductor $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$* . Nature Physics, vol. 3, pages 163–167, 2007.
- [Watanabe 2004] T. Watanabe, Y. Kasahara, K. Izawa, T. Sakakibara, Y. Matsuda, C. J. van der Beek, T. Hanaguri, H. Shishido, R. Settai et Y. Onuki. *High-field state of the flux-line lattice in the unconventional superconductor CeCoIn_5* . Phys. Rev. B, vol. 70, page 020506, Jul 2004.
- [Willers 2010] T. Willers, Z. Hu, N. Hollmann, P. O. Körner, J. Gegner, T. Burnus, H. Fujiwara, A. Tanaka, D. Schmitz, H. H. Hsieh, H.-J. Lin, C. T. Chen, E. D. Bauer, J. L. Sarrao, E. Goremychkin, M. Koza, L. H. Tjeng et A. Severing. *Crystal-field and Kondo-scale investigations of CeMIn_5 ($M = \text{Co}, \text{Ir}, \text{and Rh}$) : A combined x-ray absorption and inelastic neutron scattering study*. Phys. Rev. B, vol. 81, page 195114, May 2010.
- [Yamani 2010] Z. Yamani, Z. Tun et D. H. Ryan. *Neutron scattering study of the classical antiferromagnet MnF_2 : a perfect hands-on neutron scattering teaching course*. Canadian Journal of Physics, vol. 88, pages 771–797, 2010.
- [Yanase 2009] Youichi Yanase et Manfred Sigrist. *Antiferromagnetic Order and π -Triplet Pairing in the Fulde–Ferrell–Larkin–Ovchinnikov State*. Journal of the Physical Society of Japan, vol. 78, no. 11, page 114715, 2009.
- [Yang 1998] Kun Yang et S. L. Sondhi. *Response of a $dx^2 - y^2$ superconductor to a Zeeman magnetic field*. Phys. Rev. B, vol. 57, no. 14, pages 8566–8570, Apr 1998.
- [Young 2007] B.-L. Young, R. R. Urbano, N. J. Curro, J. D. Thompson, J. L. Sarrao, A. B. Vorontsov et M. J. Graf. *Microscopic Evidence for Field-Induced Magnetism in CeCoIn_5* . Phys. Rev. Lett., vol. 98, page 036402, Jan 2007.
- [Yu 2009] G. Yu, Y. Li, E. M. Motoyama et M. Greven. *A universal relationship between magnetic resonance and superconducting gap in unconventional superconductors*. Nature Physics, vol. 5, page 873, 2009.

Annexe A

Anisotropie du moment magnétique de CeCoIn_5

A.1 Calcul du moment magnétique de l'état fondamental de CeCoIn_5

L'état fondamental de CeCoIn_5 mesuré par des mesures de diffusion de neutrons et d'absorption X est le doublet de champ cristallin [Willers 2010] :

$$|\phi^\pm\rangle = \Gamma_7^2 = 0.36|\pm 5/2\rangle + 0.93|\mp 3/2\rangle \quad (\text{A.1})$$

De cet état, il est possible d'exprimer les facteurs de Landé anisotropes g_{\parallel} suivant l'axe- c et g_{\perp} dans le plan à partir des opérateurs J_z , J_+ et J_- .

$$g_{\parallel} = 2g_J|\langle\phi^\pm|J_z|\phi^\pm\rangle| = 1.66 \quad (\text{A.2})$$

$$g_{\perp} = g_J|\langle\phi^+|J_+|\phi^-\rangle| = g_J|\langle\phi^-|J_-|\phi^+\rangle| = 1.28 \quad (\text{A.3})$$

A partir de ces paramètres g_{\parallel} et g_{\perp} , il est possible d'obtenir la valeur du moment magnétique suivant l'axe- c μ_{\parallel} et dans le plan μ_{\perp} en considérant un spin effectif S' :

$$\mu_{\parallel} = g_{\parallel}S'\mu_B \quad (\text{A.4})$$

$$\mu_{\perp} = g_{\perp}S'\mu_B \quad (\text{A.5})$$

Le doublet $|\phi^\pm\rangle$ peut être décrit par un spin effectif $S' = 1/2$ et on obtient des moments magnétiques de : $\mu_{\parallel} = 0.83\mu_B$ et $\mu_{\perp} = 0.64\mu_B$.

A.2 Anisotropie de la susceptibilité magnétique dans CeCoIn_5

Comme on vient de le calculer, les moments magnétiques diffèrent entre la valeur dans le plan et celle suivant l'axe- c . Des mesures de susceptibilité sur un monocristal de CeCoIn_5 ont été réalisées par C. Marin au SQUID afin de déterminer la susceptibilité selon l'angle du champ magnétique appliqué. La courbe pour une température de 10 K est montrée sur la figure A.1. L'angle θ est l'écart par rapport au plan basal.

La susceptibilité magnétique a été ajustée en utilisant la formule suivante :

$$g_{\theta}^2 = g_{\parallel}^2 \cos^2(\theta) + g_{\perp}^2 \sin^2(\theta) \quad (\text{A.6})$$

On obtient un ratio $\frac{g_{\parallel}}{g_{\perp}} = 1.5$. Les valeurs de g_{\perp} et g_{\parallel} obtenues par l'état fondamental aboutissent à un ratio de 1.3, ce qui est en accord avec la mesure sachant que l'anisotropie varie en température dans CeCoIn_5 .

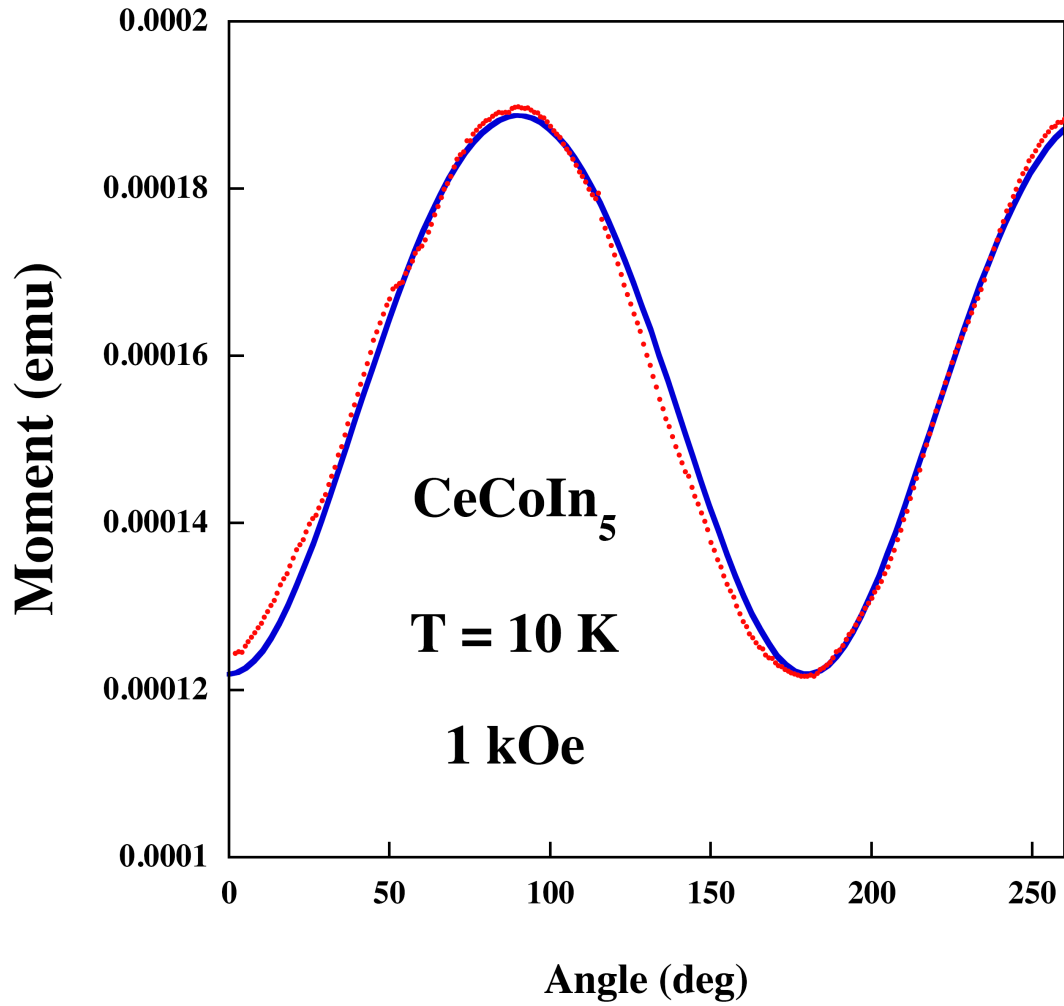


FIGURE A.1 – Susceptibilité magnétique d'un monocristal de CeCoIn_5 mesuré par SQUID à une température de 10 K. L'angle représente l'écart par rapport au plan basal de la structure tétragonal et le fit utilisé correspond à la formule (A.6)

Annexe B

Liste de publications

Articles

- J. Panarin, S. Raymond, G. Lapertot et J. Flouquet, *Evolution of the Spin Resonance in CeCoIn₅ under Magnetic Field*, Journal of the Physical Society of Japan, 2009, **78**, 113706
- J. Panarin, S. Raymond, G. Lapertot, J. Flouquet et J.-M. Mignot, *Effects of nonmagnetic La impurities on the spin resonance of Ce(1-x)La(x)CoIn(5) single crystals as seen via inelastic neutron scattering*, Physical Review B, 2011, **84**, 052505
- S. Raymond, J. Panarin, F. Givord, A.P. Murani, J.X. Boucherle et P. Lejay, *Low-energy magnetic excitation spectrum of the unconventional ferromagnet CeRh(3)B(2)*, Physical Review B, 2010, **82**, 094416

Articles de conférence

- S. Raymond, J. Panarin, G. Lapertot and J. Flouquet, *Evolution of the spin resonance of CeCoIn₅ as a function of magnetic field and La substitution*, Journal of Physical Society of Japan, 2011, **80**, Supplement B SB023
- J. Panarin, S. Raymond, G. Lapertot and J.-M. Mignot, *Effects of impurities in CeCoIn₅ using inelastic neutron scattering*, Journal of Physics : Conference Series, 2012, **340**, 012073

Dynamique de spin dans le supraconducteur non-conventionnel CeCoIn₅

Résumé :

Cette thèse porte sur l'étude de la dynamique de spin dans CeCoIn₅ par diffusion inélastique de neutrons. CeCoIn₅ est le composé à fermions lourds à base de cérium ayant la température de supraconductivité la plus élevée à pression ambiante ($T_c = 2.3$ K) et présente une supraconductivité non-conventionnelle avec un gap de type $d_{x^2-y^2}$. Dans l'état supraconducteur, le spectre des excitations magnétiques est radicalement modifié avec l'apparition d'une excitation particulièrement intense appelée "Résonance de spin". Ce type d'excitations a déjà été découvert dans les supraconducteurs haute-température critique et également dans les nouveaux supraconducteurs au Fer. Dans cette thèse, nous étudions l'évolution de la résonance de spin en présence d'un champ magnétique et avec l'introduction d'impuretés magnétiques et non-magnétiques. D'après notre étude, les impuretés vont influencer sur la résonance de spin via le gap supraconducteur, en effet la présence d'impuretés diminue le gap supraconducteur et l'énergie de la résonance de spin va diminuer de manière proportionnelle. L'influence du champ magnétique est délicate à considérer mais nos recherches suggèrent un splitting Zeeman de la résonance de spin en accord avec les modèles théoriques.

Mots clefs : CeCoIn₅, Supraconductivité non-conventionnelle, Résonance de spin, Diffusion neutronique, Fermion lourd

Spin dynamics in the unconventional superconductor CeCoIn₅

Abstract :

In this thesis, the spin dynamics of CeCoIn₅ has been studied by inelastic neutron scattering. CeCoIn₅ presents the highest critical temperature at ambient pressure ($T_c = 2.3$ K) among heavy fermion Ce-based compounds and shows an unconventional supraconductivity with a $d_{x^2-y^2}$ -wave gap. The magnetic excitation spectra is radically changed in the superconducting state with the apparition of an intense excitation named "Spin resonance". This kind of excitation has already been discovered in high- T_c superconductors and even in the new Iron-based superconductors. In this thesis, we focused on the evolution of the spin resonance with the application of a magnetic field and the introduction of magnetic and non-magnetic impurities. From our study, the main effect of impurities is to decrease the superconducting gap which leads to a proportionnal decrease of the resonance energy. The case of magnetic field is more difficult and our researchs suggest a Zeeman splitting of the spin resonance in agreements with the models developed for the cuprates.

Keywords : CeCoIn₅, Unconventional supraconductivity, Spin resonance, Neutron scattering, Heavy fermion
